N° 73 - 178

THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR INGENIEUR

par

Jacques PRUNIER
Ingénieur Ensehrmag

ETUDE DE LA DETECTION DE RAYONNEMENTS NUCLEAIRES DANS LES DIELECTRIQUES LIQUIDES

Soutenue le 24 septembre 1973, devant la Commission d'Examen

MM.	R. PAUTHENET	Président
	M. CORDELLE	Examinateurs
	A. MOUSSA	
	G. CHARPAK	Invité

N° 73 - 178

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE SCIENTIFIQUE ET MEDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR INGENIEUR

par

Jacques PRUNIER
Ingénieur Ensehrmag

ETUDE DE LA DETECTION DE RAYONNEMENTS NUCLEAIRES DANS LES DIELECTRIQUES LIQUIDES

Soutenue le 24 septembre 1973, devant la Commission d'Examen

MM.	R.	PAUTHENET	Président
	M.	CORDELLE	Examinateurs
	A.	MOUSSA	
	G.	CHARPAK	Invité

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique

MM.	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique Appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique

MM.	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM.	BULLEMER Bernhard	Physique
	HANO JUN-ICHI	Mathématiques Pures
	STEPHENS Michaël	Mathématiques Appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM.	BEAUDOING André	Pédiatrie
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
	BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme	BONNIER Jane	Chimie générale
MM.	CARLIER Georges	Biologie végétale
	COHEN Joseph	Electrotechnique
	COUMES André	Radioélectricité
	DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
	GAVEND Michel	Pharmacologie

MM.	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
	GLENAT René	Chimie organique
	HACQUES Gérard	Calcul numérique
	JANIN Bernard	Géographie
Mme	KAHANE Josette	Physique
MM.	MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
	PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
	POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
	REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
	REVOL Michel	Urologie
	REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
	ROBERT André	Chimie papetière
	DE ROUGEMONT Jacques	Neurochirurgie
	SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
	SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
	SIBILLE Robert	Construction Mécanique
	SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme	SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle	AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
	ALARY Josette	Chimie analytique
MM.	AMBLARD Pierre	Dermatologie
	AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
	ARMAND Yves	Chimie
	BEGUIN Claude	Chimie organique
	BELORIZKI Elie	Physique
	BENZAKEN Claude	Mathématiques Appliquées
	BILLET Jean	Géographie
	BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
	BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme	BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM.	BOUCHET Yves	Anatomie
	BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides
	BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
	BRUGEL Lucien	Energétique
	BUISSON Roger	Physique
	BUTEL Jean	Orthopédie
	CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
	CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
	CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
	COLOMB Maurice	Biochimie médicale
	CONTE René	Physique

MM.	COULOMB Max	Radiologie
	CROUZET Guy	Radiologie
	DURAND Francis	Métallurgie
	DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme	ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM.	FAURE Jacques	Médecine légale
	GENSAC Pierre	Botanique
	GIDON Maurice	Géologie
	GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
	GROULADE Joseph	Biochimie médicale
	HOLLARD Daniel	Hématologie
	HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
	IDELMAN Simon	Physiologie animale
	IVANES Marcel	Electricité
	JALBERT Pierre	Histologie
	JOLY Jean-René	Mathématiques Pures
	JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
	JULIEN Pierre	Mathématiques Pures
	KAHANE André	Physique générale
	KUHN Gérard	Physique
	LACOUME Jean-Louis	Physique
Mme	LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM.	LANCIA Roland	Physique atomique
	LE JUNTER Noël	Electronique
	LEROY Philippe	Mathématiques
	LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique Nucléaire
	LUU DUC Cuong	Chimie Organique
	MACHE Régis	Physiologie végétale
	MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
	MARECHAL Jean	Mécanique
	MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
	MAYNARD Roger	Physique du Solide
	MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
	MICOUD Max	Maladies infectieuses
	MOREAU René	Hydraulique
	NEGRE Robert	Mécanique
	PARAMELLE Bernard	Pneumologie
	PECCOUD François	Analyse (IUT B)
	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Mle	PIERY Yvette	Biologie animale
MM.	RACHAIL Michel	Médecine interne

MM.	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RENAUD Maurice	Chimie
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	SHOM Jean-Claude	Chimie Générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques Appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques Appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
	CHEEKE John	Thermodynamique
	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
	SIDNEY STUARD	Mathématiques Pures
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

Fait le 30 mai 1972

AVANT - PROPOS

Le travail présenté dans ce mémoire a été effectué au Laboratoire d'Electronique et de Technologie de l'Informatique du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble grâce à une bourse du Commissariat à l'Energie Atomique.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur PAUTHENET, Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure d'Electrotechnique et de Génie Physique et du Laboratoire des Champs Intenses (CNRS) d'avoir bien voulu me faire l'honneur de présider le jury.

Je désire exprimer ma reconnaissance à Monsieur le Professeur MOUSSA,mon directeur de recherche,pour ses conseils avisés.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur CORDELLE, Directeur du Laboratoire d'Electronique et de Technologie de l'Informatique pour m'avoir accueilli dans son laboratoire.

Que Monsieur CHARPAK soit assuré de ma reconnaissance pour ses conseils pertinents et pour sa participation au Jury.

Je remercie Monsieur GARIOD, Chef du Laboratoire de Mesure Contrôle et Traitement Electronique et Monsieur DELCROIX, son adjoint pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail et pour avoir mis à ma disposition les moyens nécessaires à cette étude.

Que Messieurs ALLEMAND, LAVAL et THOMAS soient assurés de ma gratitude pour leur aide constante, leurs conseils précieux et leur cordiale sympathie tout au long de ce travail.

Je tiens à remercier Messieurs VERDIER et CLAUDET, du Service des Basses Températures pour l'aide qu'ils m'ont apportée pour la réalisation de la partie cryogénique du dispositif expérimental ainsi que Messieurs PERROUD, REBIERE et BERANGER du Laboratoire d'Applications Spéciales de la Physique, pour leur collaboration relative aux problèmes de mélanges de liquides.

Je remercie tous mes camarades de la Division d'Electronique Nucléaire du Service des Basses Températures et du Laboratoire d'Applications Spéciales de la Physique pour leur sympathie et leur aide cordiale.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION 9

Chapitre I - GENERALITES 13

I.1 - LA DETECTION DES PARTICULES NUCLEAIRES 13

I.1.1 - Les particules chargées 13
I.1.1.1 - Généralités
I.1.1.2 - Parcours
I.1.1.3 - Densité d'ionisation

I.1.2 - Les particules électromagnétiques (photons) 16
I.1.2.1 - Section efficace de réaction
I.1.2.2 - Modes d'interaction

I.1.3 - Les neutrons 18
I.1.3.1 - Réaction neutron-alpha (n,α)
I.1.3.2 - Réaction neutron-proton (n,p)

I.2 - LA CONDUCTION ELECTRONIQUE DANS LES LIQUIDES 19

I.2.1 - Système cristallin, système amorphe 19

I.2.2 - Interactions atome-électron ou molécule-électron 20

I.2.3 - Etats électroniques dans les liquides 21

I.2.4 - Mobilité et vitesse de déplacement des porteurs 21

I.2.5 - Phénomènes de transport à fort champ électrique dans les gaz rares liquéfiés 22
I.2.5.1 - Mobilité et vitesse de déplacement
I.2.5.2 - Excitations lumineuses dans les gaz rares liquéfiés

I.3 - PHENOMENES DUS A LA DENSITE DES GAZ RARES LIQUEFIES 23

I.3.1 - Conséquence des chocs inélastiques 23

I.3.2 - Recombinaison 24

Chapitre II - PREPARATION DES LIQUIDES 27

II.1 - PURIFICATION 27

II.1.1 - Nécessité 27

II.1.2 - Corps à éliminer 27

II.1.3 - Procédés de purification 28
II.1.3.1 - Elimination de l'azote
II.1.3.2 - Elimination de l'oxygène
II.1.3.3 - Elimination des impuretés réductrices
II.1.3.4 - Elimination des impuretés polaires

II.1.4 - Banc de purification 30
II.1.4.1 - Schéma
II.1.4.2 - Réalisation
II.1.4.3 - Analyses

II.2 - CRYOGENIE 37

II.2.1 - Source de frigories 37
II.2.2 - Chambre de liquéfaction 38
II.2.2.1 - Isolation thermique
II.2.2.2 - Liaisons avec l'extérieur

II.2.3 - Régulation en température 38

Chapitre III - FONCTIONNEMENT EN CHAMBRE D'IONISATION A IMPULSIONS 41

III.1 - LA CHAMBRE A ELECTRODES PLANES ET PARALLELES 41

III.1.1 - Généralités 41

III.1.2 - Signaux électriques recueillis 41
III.1.2.1 - Charge ponctuelle - Attachement et recombinaison nuls
III.1.2.2 - Cas de l'ionisation créée par une interaction nucléaire
III.1.2.3 - Spectres d'amplitude (ou d'énergie)
III.1.2.4 - Cas où il existe un effet de recombinaison
III.1.2.5 - Effet de l'attachement
III.1.2.6 - Conclusion

III.2 - LA CHAMBRE A ELECTRODES CYLINDRIQUES 44

III.2.1 - Signaux électriques recueillis 44
III.2.1.1 - Charge pontuelle
III.2.1.2 - Spectre d'amplitude
III.2.1.3 - Influence de l'attachement
III.2.1.4 - Influence de l'attachement sur le spectre d'amplitude
III.2.1.5 - Conclusions

III.3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX 51

III.3.1 - Chambre plane 51
III.3.1.1 - Collection des charges créées par les particules α de l'américium-241 (5,5 MeV)
III.3.1.2 - Vitesse de déplacement des électrons dans l'argon et le xénon liquides

III.3.2 - Chambre cylindrique 52
III.3.2.1 - Détection de rayons X ou γ
III.3.2.2 - Attachement

III.4 - CONCLUSIONS 57

Chapitre IV - FONCTIONNEMENT EN REGIME PROPORTIONNEL 59

IV.1 - L'AVALANCHE ELECTRONIQUE 59
IV.1.1 - Généralités 59
IV.1.2 - Premier coefficient de Townsend 59
IV.1.2.1 - Définition
IV.1.2.2 - Influence des impuretés

IV.1.3 - Gain dû à l'avalanche électronique 60
IV.1.3.1 - Généralités
IV.1.3.2 - Charge induite
IV.1.3.3 - Cas particulier où $\alpha = \alpha_o$ = constante et $\beta = 0$
IV.1.3.4 - Calcul général de α
IV.1.3.5 - Spectre d'amplitude ou d'énergie

IV.1.4 - Phénomènes parasites 64
IV.1.4.1 - Phénomènes dus aux ions
IV.1.4.2 - Phénomènes dus aux atomes excités
IV.1.4.3 - Influence des couches atomiques ou moléculaires adsorbées
IV.1.4.4 - Influence du milieu de détection
IV.1.4.5 - Bilan - Deuxième coefficient de Townsend
IV.1.4.6 - Influence sur le gain d'avalanche électronique

IV.2 - L'AVALANCHE ELECTRONIQUE DANS LES LIQUIDES 68

IV.2.1 - Conditions expérimentales 68
IV.2.2 - Argon liquide 68
IV.2.3 - Xénon liquide 71
IV.2.3.1 - Spectres d'énergie
IV.2.3.2 - Purification électrolytique
IV.2.3.3 - Gain d'avalanche
IV.2.3.4 - Claquage
IV.2.3.5 - Exploitation des courbes de gain
IV.2.3.6 - Calcul théorique du coefficient α
IV.2.3.7 - Calcul de l'énergie moyenne des électrons en fonction du champ électrique

IV.3 - CONCLUSIONS 84

Chapitre V - LES MELANGES DE LIQUIDES 87

V.1 - ETATS ENERGETIQUES D'UNE MOLECULE 87

V.2 - CONSEQUENCES DES PROPRIETES D'EXCITATION DES NIVEAUX D'ENERGIE MOLECULAIRES 87

V.2.1 - Absorption des photons 87
V.2.2 - Transfert d'énergie 88
V.2.3 - Neutralisation d'un ion moléculaire 88

V.3 - INTERET DE LA PRESENCE D'IMPURETES MOLECULAIRES DANS LES GAZ NOBLES LIQUEFIES 88

V.3.1 - Réduction de l'effet photoélectrique sur la cathode 88
V.3.2 - Réduction du nombre d'atomes excités 89
V.3.3 - Réduction de l'émission cathodique due aux ions 89
V.3.4 - Estimation de la quantité d'impuretés moléculaires nécessaire 90
V.3.4.1 - Réduction de l'effet photoélectrique
V.3.4.2 - Réduction de $\overline{W}$
V.3.4.3 - Réduction de γ_i
V.3.4.4 - Bilan

V.4 - INFLUENCE DES IMPURETES MOLECULAIRES SUR LES PROPRIETES DE TRANSPORT DES ELECTRONS 91

V.5 - METHODE EXPERIMENTALE 92

V.5.1 - Choix des liquides 92
V.5.2 - Méthode expérimentale 92
V.5.3 - Résultats expérimentaux 93
V.5.3.1 - Résultats en chambre d'ionisation plane
V.5.3.2 - Résultats en chambre d'ionisation cylindrique
V.5.3.3 - Résultats en régime proportionnel
V.5.4 - Conclusion 99

Chapitre VI - LA LOCALISATION DES PARTICULES 101

VI.1 - GENERALITES 101

VI.1.1 - Principe de localisation choisi 101
VI.1.2 - Résolution spatiale 102
VI.1.2.1 - Définition
VI.1.2.2 - Fonction de transfert de modulation (FTM)
VI.1.2.3 - Nouvelle définition de la résolution spatiale
VI.1.2.4 - Phénomènes limitant la résolution spatiale
VI.1.2.5 - Réduction des effets limitant la résolution spatiale
VI.1.3 - Paramètres électrostatiques d'un détecteur fonctionnant en régime proportionnel 107
VI.1.3.1 - Potentiel, champ électrique
VI.1.3.2 - Effets de l'inhomogénéité des paramètres géométriques
VI.1.3.3 - Forme de l'impulsion de charges
VI.1.3.4 - Conclusions

VI.2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL 113

VI.2.1 - Prototype de multidétecteur 113

VI.2.1.1 - Electrodes

VI.2.1.2 - Environnement cryogénique

VI.2.1.2.1 - Fenêtre d'entrée

VI.2.1.2.2 - Enveloppe du détecteur

VI.2.1.3 - Conclusion

VI.2.2 - Prototype simplifié 115

VI.2.2.1 - Electrodes

VI.2.2.2 - Source de rayonnement

VI.2.2.3 - Résultats

VI.2.3 - Conclusion 116

CONCLUSION 119

REFERENCES 121

ETUDE DE LA DETECTION DE RAYONNEMENTS NUCLEAIRES DANS LES DIELECTRIQUES LIQUIDES

INTRODUCTION

L'imagerie nucléaire constitue l'ensemble des techniques et méthodes permettant la visualisation de la distribution géographique ou temporelle de particules nucléaires.

C'est un domaine très vaste au sein duquel se dégagent en particulier deux grands domaines d'application :

- les dispositifs de visualisation de la distribution des traceurs radioactifs utilisés en médecine nucléaire,

- les systèmes de localisation des particules de la physique des hautes énergies.

La médecine nucléaire s'attache à la mesure de la distribution d'un radioisotope (émetteur de rayons X ou γ) préalablement introduit dans un organe par injection, inhalation, etc...

En raison de la fixation sélective de certains radioisotopes dans l'organe à examiner (par exemple l'iode-125 dans la glande thyroïde), il est possible, en choisissant soigneusement le composé véhiculant le traceur, de réduire considérablement la dose de rayonnement absorbée par rapport à un examen radiologique conventionnel.

Les premiers appareils permettant le relevé des courbes d'activité faisaient appel à une technique de relevé "point par point". A cause de la lenteur du déplacement de la sonde, ces appareils, appelés "scintigraphes rectilinéaires" ou "scanners" ne permettent pas d'effectuer des études dynamiques.

Depuis quelques années seulement sont apparus de nouveaux dispositifs appelés "détecteurs stationnaires" qui permettent d'effectuer directement la cartographie de la concentration de l'isotope fixé dans l'organe exploré. L'un des plus connus est la caméra d'Anger dont le fonctionnement est basé sur la détection des particules dans un scintillateur à l'iodure de sodium mais, par sa modeste résolution spatiale (de l'ordre de 10 à 12 mm), elle est mal adaptée à l'étude de certains organes (thyroïde, oeil). D'autre part, son prix de revient est très élevé.

Les travaux sur l'étude de l'avalanche électronique déclenchée par l'ioni-

sation créée lors de l'interaction d'une particule nucléaire avec un gaz soumis à un fort champ électrique ont permis le développement de chambres "proportionnelles" multifils ou multidétecteurs à gaz [1]. De par la souplesse de leur conception technologique, la simplicité de l'électronique associée et leur faible prix de revient, ce sont des outils bien adaptés à la cartographie et à l'exploration fonctionnelle d'organes divers.

Ces multidétecteurs à gaz sont aussi très utilisés en physique des hautes énergies [2] en tant que détecteurs de localisation de particules placés après les aimants de déviation d'un spectromètre.

Cependant, dans ces deux domaines d'application apparaissent certaines limitations inhérentes à la faible densité du milieu de détection.

En médecine nucléaire, l'emploi des multidétecteurs à gaz est limité par leur perte de rendement de détection aux moyennes et hautes énergies (figure 1) et empêche en particulier l'usage du technétium 99 m, traceur très intéressant pour de nombreux organes et de traceurs émetteurs de positrons à période courte, tendance actuelle de la médecine nucléaire.

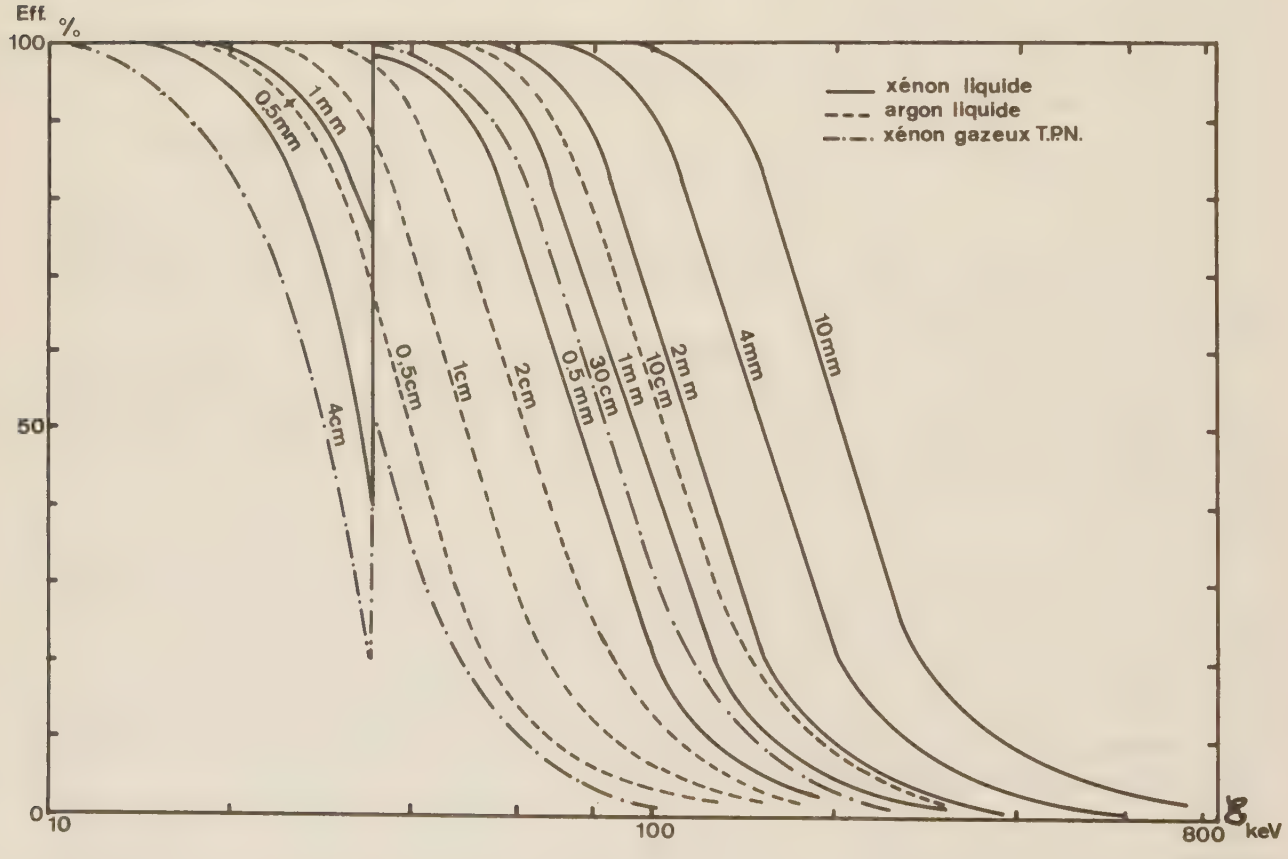


Figure 1 - Efficacités de détection photoélectriques du xénon gazeux T.P.N. et liquide, de l'argon liquide en fonction de l'énergie du rayonnement incident. (d'après la référence [3]).

De plus, à cause de la diffusion des électrons en mouvement dans un gaz et de l'étalement du nuage électronique lors de l'avalanche,la résolution spatiale (distance minimale pour laquelle deux points sources sont séparés par le détecteur) des multidétecteurs à gaz est relativement limitée. Or, en physique des hautes énergies, l'énergie des particules à étudier augmente de plus en plus. Cette tendance conduit à l'utilisation soit d'aimants de spectromètres de plus en plus volumineux, soit de détecteurs à haute résolution spatiale. Cette dernière solution devient rapidement avantageuse quand l'énergie des particules impose des aimants de déviation volumineux, donc de prix de revient élevé [4].

De plus, malgré le faible nombre de charges créées par une particule au minimum d'ionisation (particule de forte énergie faiblement ionisante) dans un gaz, il est impossible d'accroître l'épaisseur du volume de détection sans détériorer la résolution spatiale (erreur de parallaxe).

Une des solutions qui permettent de pallier ces inconvénients en médecine nucléaire et en physique des hautes énergies tout en conservant les mêmes principes de détection et de localisation que pour les multidétecteurs à gaz est l'utilisation d'un milieu condensé.

Les gaz rares liquéfiés sont, à cet égard, des milieux de détection très prometteurs [5].

En effet, ils sont 500 à 1 000 fois plus denses que les gaz. L'efficacité de détection est donc augmentée dans de grandes proportions (figure 1).

Le nombre de charges créées par une particule au minimum d'ionisation est assez élevé pour permettre une réduction importante de l'épaisseur de la lame de détection [4]. De plus, la diffusion électronique est très réduite [6].

Ces liquides ne se polarisent pas comme le font les gaz nobles solidifiés où les charges positives sont quasi-immobiles [7]. Par ailleurs, les gaz rares sont chimiquement inertes et peuvent être purifiés jusqu'à des teneurs en impuretés extrêmement faibles (de l'ordre de 10 à 100 parts par billion) [8][9].

Enfin, les électrons ont une vitesse de déplacement élevée dans ces milieux [10] et peuvent donc y être considérés comme quasi-libres.

Les premiers travaux concernant les liquides noblent datent de 1948 [11][12]. Effectués dans l'argon liquide, ces travaux mettent en évidence l'existence de porteurs négatifs rapides. La conductivité induite est donc due à des électrons. Ils font aussi ressortir que l'énergie moyenne de création d'une paire électron-ion dans le liquide est voisine de celle nécessaire dans le gaz.

Vers les années 1960 ont été publiés plusieurs travaux concernant le claquage dans l'argon soumis à un champ électrique continu et les diverses interprétations de ce phénomène ([13abc][14][15][16]). De 1962 à 1971, un groupe de l'Université de Chicago, s'est intéressé aux phénomènes de transport des électrons dans l'argon liquide soumis à des champs électriques relativement faibles [17], c'est-à-dire dans un domaine situé en dehors de celui relatif aux applications de détection nucléaire. Cependant, par sa rigueur, la théorie de transport des électrons proposée par ce groupe apporte de nombreux renseignements.

Depuis les années 1970, plusieurs équipes ont entrepris l'étude des applications des liquides nobles pour la détection nucléaire en utilisant soit un effet de scintillation [18], soit un processus d'ionisation ([6][19]).

Le sujet du présent travail de thèse est axé sur l'étude des phénomènes

d'ionisation créés par les particules nucléaires dans les liquides nobles, des propriétés de transport de charges et sur les applications de ces milieux de détection à l'imagerie nucléaire.

Les travaux portent essentiellement sur l'étude de l'argon et du xénon liquides, le krypton ayant été rejeté à cause du bruit de fond nucléaire relativement important dû à l'isotope ^{85}Kr émetteur β^- (énergie maximale 0,67 MeV) de période longue (10, 7 ans).

Après un rappel sur la détection nucléaire et de certaines propriétés caractéristiques des liquides sont exposés le mode de préparation des liquides (purification et contrôle par analyse) et la technique cryogénique permettant d'obtenir ces liquides.

Dans une troisième partie est étudié le fonctionnement en chambre d'ionisation (plane et cylindrique), l'accent étant mis sur les propriétés de transport des électrons.

Le chapitre suivant concerne l'étude de l'avalanche électronique dans les liquides et de "l'amplification" des charges, conséquence de cette avalanche.

Dans une cinquième partie sont examinées les propriétés résultant de l'addition d'impuretés moléculaires aux liquides nobles.

Enfin, en dernière partie sont analysés les problèmes relatifs à la localisation de particules dans un prototype de multidétecteur à diélectrique liquide.

Chapitre I

GENERALITES

I.1 - LA DETECTION DES PARTICULES NUCLEAIRES

Il convient de séparer les particules nucléaires en trois groupes : les particules chargées (X, β^-), les particules électromagnétiques (X ou γ) et les particules neutres (neutrons).

I.1.1 - Les particules chargées

I.1.1.1 - Généralités

Les particules chargées perdent leur énergie dans la matière par interaction coulombienne avec les noyaux et les électrons des atomes ou des molécules. Cette interaction peut créer soit une ionisation du milieu si l'énergie transmise à l'atome ou à la molécule est supérieure à son énergie d'ionisation ε_i soit une excitation des niveaux d'énergie des électrons de l'atome ou de la molécule lorsque l'énergie transmise est supérieure à l'énergie d'excitation ε_e d'un des niveaux.

En ce qui concerne les particules chargées de forte énergie, il peut aussi y avoir interaction électromagnétique avec le champ électrique du noyau et production de photons par effet de freinage ou par effet Čerenkov.

L'ionisation apparaît comme le phénomène principal dont l'effet est retenu alors que l'excitation n'est qu'une dissipation parasite de l'énergie transmise par la particule. Le bilan est exprimé sous la forme d'une énergie moyenne d'ionisation $\overline{W}$ qui tient compte de ces pertes. Le tableau suivant rassemble les énergies ε_i, ε_e et $\overline{W}$ pour quelques gaz usuels.

Gaz	ε_i eV	ε_e eV	$\overline{W}$ eV
He	24,7	21,5 - 23,5	46
A	15,7	11,5 - 11,8 12,7 - 13,3 14 - 14,9	26,4
X_e	12,1	8,4 - 10,1 10,5 - 11 11,9	21,6
CH_4	13,1	10,2 - 11,5 11,8	29,2
CO_2	13,7	11 - 11,5 11,7	34,4
C_2H_2	11,4	2 - 6,2 7,7 - 8,2 9,2 - 10	27,6

I.1.1.2 - Parcours

Lorsque la particule chargée a dissipé toute son énergie dans le milieu de détection, elle s'arrête et est neutralisée. D'une manière générale, il est donc possible de définir un parcours de la particule. Ce dernier est proportionnel à la masse de la particule mais inversement proportionnel au carré de son numéro atomique.

Par exemple, une particule α d'énergie 5,5 MeV parcourt 55 microns dans l'argon liquide et 36 microns dans le xénon liquide.

Dans le cas de fragments de fission qui ont un numéro atomique élevé, le parcours est beaucoup plus court (environ 10 microns).

Si la particule chargée est un électron, elle est moins ionisante et pénètre plus profondément dans la matière. D'autre part, un électron peut perdre jusqu'à la moitié de son énergie au cours de la première collision et libérer ainsi plusieurs électrons secondaires très énergétiques qui ioniseront à leur tour. La notion de parcours devient donc moins nette. Il est cependant possible de définir un parcours maximal. La figure 2, montre la variation du parcours maximal des électrons en fonction de l'énergie dans l'argon et le xénon liquides (calculés d'après la référence [20]).

I.1.1.3 - Densité d'ionisation

La perte d'énergie d'une particule chargée n'est pas uniforme tout au long de son parcours. Son pouvoir d'ionisation décroît quand l'énergie de la particule augmente. La densité d'ionisation $\frac{dN_i}{dx}$ (nombre de paires d'ions par unité de longueur) est donc maximale dans la dernière partie du parcours. La figure 3 en est un exemple pour des particules α de 5,5 MeV et des protons de 1,45 MeV (qui ont

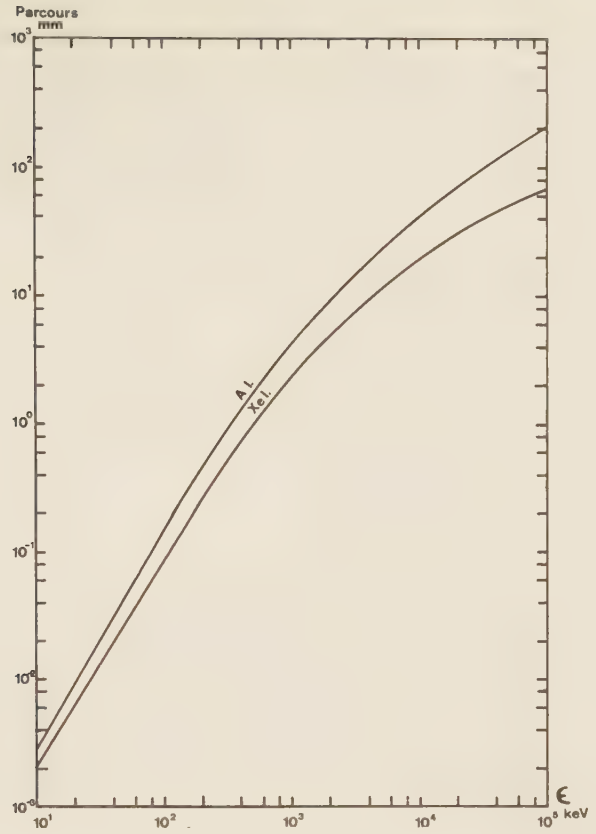


Figure 2 - Parcours maximal des électrons dans l'argon et le xénon liquides en fonction de l'énergie des électrons (calculés d'après la référence [20]).

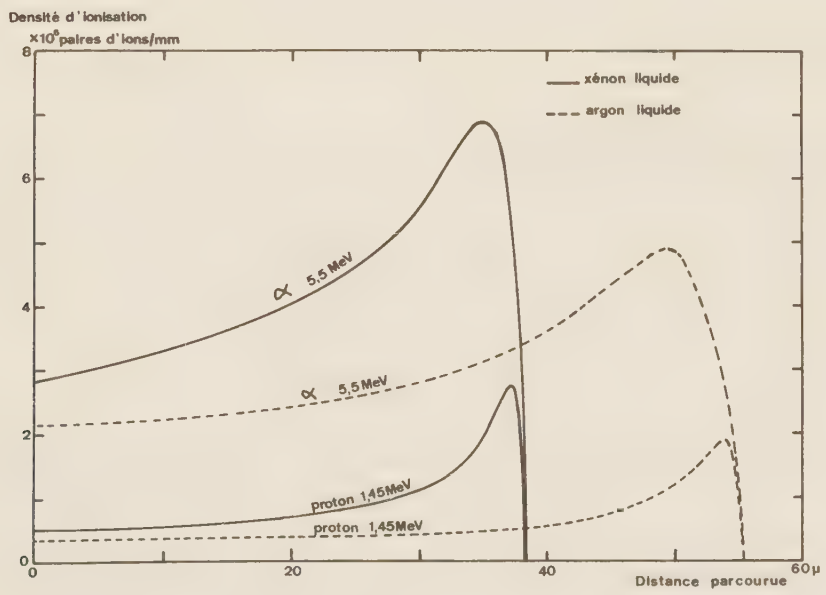


Figure 3 - Densité d'ionisation des particules α de 5,5 MeV et des protons de 1,45 MeV dans l'argon et le xénon liquides (calculés d'après la référence [21]).

un même parcours). Il est alors possible de concevoir qu'une particule chargée de haute énergie qui n'est arrêtée que par une épaisseur traversée considérable perde son énergie quasi-uniformément avec un pouvoir d'ionisation constant et très faible.

Par exemple, ces particules dites au minimum d'ionisation perdent respectivement 210 keV et 430 keV par millimètre dans l'argon et le xénon liquides, ce qui correspond à 8 100 et 15 000 paires d'ions par millimètre [4].

I.1.2 - Les particules électromagnétiques (photons)

Bien qu'étant des particules chargées, les particules β^+ (positrons) s'annihilent quasi-immédiatement dans la matière lors d'une collision avec un électron en produisant deux rayons γ colinéaires et de sens opposés.

I.1.2.1 - Section efficace de réaction

Lorsqu'un faisceau de particules d'intensité I_o traverse un écran d'épaisseur infiniment petite dx, l'intensité I du faisceau à la sortie est $I = I_o - dI_o$, la perte d'intensité dI_o étant due à une certaine réaction R.

Le nombre d'interactions par unité de surface dC_R ($dC_R = -dI_o$) est proportionnel à l'intensité I_o du faisceau, au nombre N d'atomes par unité de volume dans la cible et à l'épaisseur traversée dx. Donc : $dC_R = -dI_o = \sigma_R I_o N dx$.

Le coefficient σ_R, assimilable à une surface est appelé section efficace microscopique de la réaction R.

Le produit $N\sigma_R$ est appelé section efficace macroscopique de la réaction R.

En intégrant, il vient :

$$I = I_o e^{-(N\sigma_R x)}$$

Le rapport $\frac{I_o - I}{I_o}$ exprimé en pour cent est appelé efficacité de réaction de la lame de matériau traversé.

I.1.2.2 - Modes d'interaction

I.1.2.2.1 - Effet photoélectrique

La particule d'énergie $h\nu$ communique toute son énergie à un électron lié des couches profondes K, L, M,... d'énergie $|E_K| > |E_L| > |E_M| > \ldots$ Il y a ensuite réarrangement électronique de l'atome excité avec soit émission d'un rayon X d'énergie $E_{K,L,M,\ \ldots}$ (qui peut à son tour éjecter un électron des couches L, M,... d'un autre atome), soit émission d'un électron (effet Auger).

Le photoélectron a pour énergie $E = h\nu - E_{K,L,M,\ \ldots}$ et ionise à son tour la matière. Les sections efficaces de ces réactions augmentent avec l'énergie de liaison des électrons des couches correspondantes, d'où l'importance de la réaction sur la couche la plus profonde et les discontinuités des courbes de section efficace d'effet photoélectrique τ correspondant aux énergies d'extraction des électrons liés (figure 4). La section efficace de l'effet photoélectrique varie comme la puissance cinquième du numéro atomique de la cible.

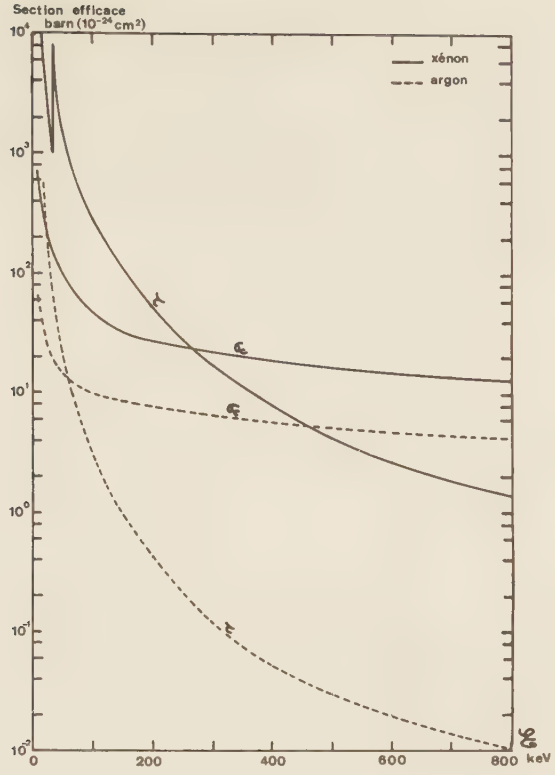


Figure 4 - Sections efficaces microscopiques des diverses réactions d'interaction des photons avec un atome d'argon et de xénon (d'après la référence [3]).

N.B. : Pour calculer les sections efficaces macroscopiques pour l'argon et le xénon liquides, multiplier respectivement par $2{,}1.10^{22}$ at/cm^3 et par $1{,}4.10^{22}$ at./cm^3.

I.1.2.2.2 - Effet Compton

Le photon perd une partie de son énergie $\mathcal{E}$ dans une collision élastique avec un électron faiblement lié d'un atome. L'électron acquiert une énergie cinétique égale à la perte d'énergie du photon.

Les lois des chocs élastiques montrent que l'énergie cédée par le photon est comprise entre zéro et un maximum W_e avec :

$$W_e = \frac{2\,\mathcal{E}^2}{m_o\,c^2 + 2\,\mathcal{E}}$$

et $m_o\,c^2$: énergie de masse de l'électron (511 keV). Le spectre d'émission des électrons est continu et quasi-uniforme de 0 à W_e avec un maximum pour les énergies voisines de W_e (figure 5).

La section efficace de l'effet Compton σ_c est proportionnelle au numéro atomique de la cible et décroît régulièrement avec l'énergie des photons incidents (figure 4).

I.1.2.2.3 - Création de paires

La création d'une paire électron-positron emprunte au photon incident une

énergie égale à deux fois l'énergie de création d'un électron soit 1,02 MeV. La réaction possède donc un seuil en énergie.

Cette création doit se produire nécessairement au voisinage d'une particule (noyau, électron) devant participer à la conservation de la quantité de mouvement.

Dans le cas d'un noyau, la paire emporte l'énergie excédentaire du photon répartie également entre l'électron et le positron. Si la particule est un électron, elle emporte aussi une fraction de l'énergie en excédent. La section efficace de création de paires χ est proportionnelle au carré du numéro atomique de la cible et croît avec l'énergie du photon incident.

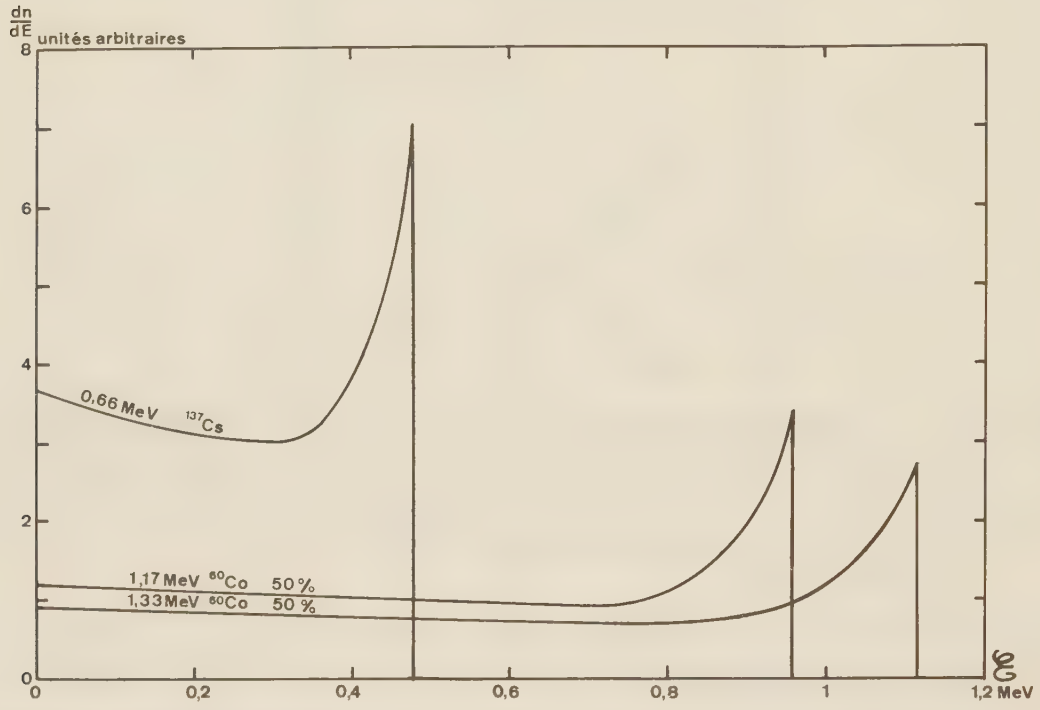


Figure 5 - Spectre d'énergie des électrons Compton dans l'argon et le xénon (rayonnements incidents : ^{60}Co - 1,17 MeV et 1,33 MeV ; ^{137}Cs - 661 keV) d'après la formule de Klein-Nishina (référence [21]).

I.2.2.4 - Coefficient d'absorption totale

La somme des sections efficaces macroscopiques définit un coefficient μ appelé coefficient d'atténuation ou d'absorption totale.

I.1.3 - Les neutrons

Les neutrons peuvent être détectés grâce à des réactions nucléaires produisant des particules chargées. Les sections efficaces de ces réactions avec les gaz rares, excepté l'hélium 3, sont peu élevées, ceux-ci étant quasi-transparents aux neutrons.

I.1.3.1 - Réaction neutron-alpha (n,α)

La cible utilisée est le néon 20. La réaction est la suivante :

$$^{20}N_e + {}^1n \rightarrow {}^4\alpha + {}^{17}O - 603 \text{ keV}.$$

Cette réaction n'est possible qu'avec des neutrons énergétiques. La section efficace passe de 2.10^{-26} cm^2 à $1,5.10^{-24}$ cm^2 pour des neutrons d'énergie variant de 2,8 MeV à 4,4 MeV.

I.1.3.2 - Réaction neutron-proton (n,p)

I.1.3.2.1 - Avec l'hélium 3 (la plus importante)

$$^3He + {}^1n \rightarrow {}^1p + {}^3H + 0,78 \text{ MeV}$$

La section efficace est de 10^{-21} cm^2 pour les neutrons thermiques et de 7.10^{-25} cm^2 pour les neutrons de 1 MeV.

I.1.3.2.2 - Avec le krypton et l'hélium 4

Ce sont des réactions de désintégration qui ne sont possibles qu'avec des neutrons de forte énergie. La section efficace de réaction est de l'ordre de 10^{-26} cm^2.

I.2 - LA CONDUCTION ELECTRONIQUE DANS LES LIQUIDES

Les liquides diélectriques sont des liquides très purs où il existe naturellement très peu de porteurs libres pouvant se déplacer dans un champ électrique. Il n'y existe pas de phénomènes électrochimiques ou de dissociation de molécules dont les effets électrolytiques masqueraient les effets d'ionisation dus aux particules.

Par ailleurs, dans un gaz, les informations déduites des phénomènes de transport permettent de connaître les propriétés des atomes ou des molécules libres à cause de l'absence de corrélations entre les positions des atomes ou des molécules et, par conséquent, d'interactions atomiques ou moléculaires.

Or, dans un milieu dense, il est impossible d'ignorer ces interactions.

I.2.1 - Système cristallin - système amorphe

Dans un solide monocristallin, la position des atomes est bien définie. Ceux-ci ne peuvent qu'osciller faiblement autour d'une position moyenne bien connue.

Dans un liquide la notion d'ordre est bien plus floue.

Dans le cas de liquides monoatomiques (gaz rares liquéfiés - métaux fondus), les mesures de diffraction de neutrons ou de rayons X ont montré qu'il existait un ordre à courte distance [22]. La figure 6 donne un exemple de densité sphérique des atomes dans l'argon liquide et le sodium fondu en fonction du rayon dont l'origine est le centre d'un atome quelconque.

Dans le cas de molécules, l'ordre à courte distance sera d'autant plus grand que la forme des molécules se rapprochera de la sphère.

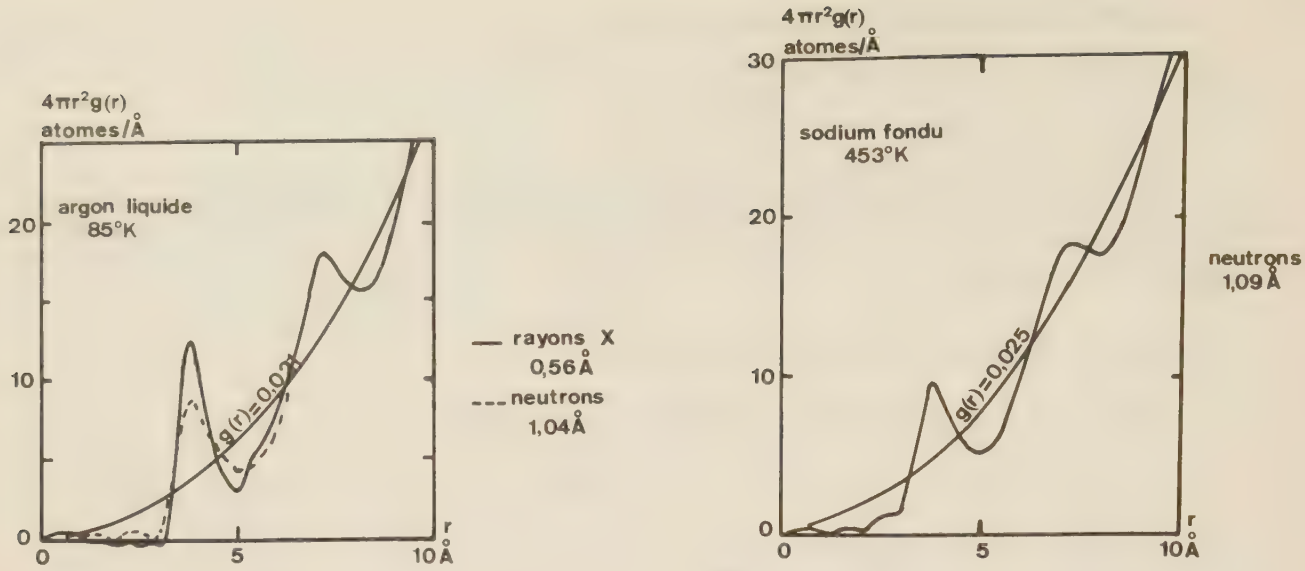


Figure 6 - Densité atomique dans l'argon liquide et le sodium fondu en fonction de la distance r au centre d'un atome pris pour origine (d'après la référence [22]).

I.2.2 - Interactions atome-électron ou molécule-électron

Il convient de considérer à la fois leurs signes, amplitudes et domaines d'action.

Par exemple, dans le cas de l'argon et des gaz rares plus lourds, le potentiel d'interaction est négatif, faible et de long rayon d'action [23].

Par contre, dans le cas de l'hélium, ce potentiel d'interaction est positif, de forte amplitude (de l'ordre de 10 eV) et de court rayon d'action [24].

Dans le cas d'un milieu dense, ces interactions électron-atome se doublent d'interactions atome-atome dues à la polarisation de ces atomes par le champ de l'électron.

Le potentiel local sera de la forme :

$$V_{loc}(R) = V_{at}(R) \times f(R)$$

avec R, distance de l'électron au centre du noyau.

Le facteur multiplicatif f(R) représente les réactions dues à la présence des atomes voisins. Son amplitude sera donc fortement influencée par l'ordre à court terme s'il existe (effet d'écran). Le facteur f(R) présentera des minimums correspondant aux maximums de densité atomique (courbes de la figure 6).

A cause de la densité du liquide, il y a recouvrement des potentiels atomiques et l'électron n'est jamais en espace libre comme dans un gaz. Il existe donc un potentiel moyen auquel se superposent des variations qui, seules, sont vues par l'électron.

Ce potentiel moyen correspond au travail, exprimé en électron-volts, nécessaire pour injecter un électron dans le liquide. Il est de -0,33 eV dans l'argon liquide et de +1,05 eV dans l'hélium liquide par rapport au vide [17], en accord avec le signe des interactions atome-électron dans ces liquides.

Dans le cas de molécules, le potentiel d'interaction est d'autant plus anisotrope que la molécule se rapproche de la forme en chaîne.

D'autre part, dans la plupart des hydrocarbures liquides, les forces d'interaction sont répulsives [25].

I.2.3 - Etats électroniques dans les liquides

Des électrons injectés dans un liquide créent, des niveaux d'énergie tels que l'énergie du système soit minimale. Ces états peuvent être localisés (électrons piégés) ou délocalisés (électrons libres). Dans un système complètement désordonné, il est peu probable qu'il existe des électrons délocalisés [26]. Par contre, lorsqu'il existe un ordre soit local, soit à court terme (cas des microcristaux, des liquides monoatomiques), l'électron peut être soit libre (argon, xénon liquides), soit piégé ou bien dans un état intermédiaire quand il peut sauter de piège en piège.

Dans le cas de l'hélium, par exemple, où le potentiel d'interaction est fort et répulsif, l'état délocalisé ne correspond pas à l'énergie minimale. En effet, les atomes fortement polarisés se repoussent et l'électron est localisé dans une cavité [24]. Cet état résulte de la fluidité et de la densité du milieu, les forces de répulsion équilibrant les forces de tension superficielle.

Il a d'ailleurs été montré que, en comprimant l'hélium à basse température, il existe une densité critique pour laquelle l'électron passe d'un état délocalisé (dans le gaz) à un état localisé [25][27].

Dans le cas de liquides moléculaires, le concept d'électron localisé dans une cavité de dimensions de l'ordre de grandeur de celles de la molécule est aussi vraisemblable.

Les pièges énergétiques peuvent aussi être générés par les discontinuités de la bande de conduction dues au désordre du système, à la façon des solides amorphes [28].

Ces deux modèles conduisent à des énergies de piégeage comprises entre 0,1eV et 1 eV ce qui est confirmé par l'expérience [28].

I.2.4 - Mobilité et vitesse de déplacement des porteurs

Les mobilités μ (rapport de la vitesse de déplacement $\bar{v}_d$ au champ électrique E) des porteurs dépend fortement de leur nature et de leur état énergétique. Dans le cas d'électrons libres, les mobilités sont fortes (de l'ordre de 350 $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$ dans l'argon liquide jusqu'à 500 $V.cm^{-1}$; de l'ordre de 50 $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$ pour l'argon, le krypton et le xénon liquide pour $E \simeq 10^4$ $V.cm^{-1}$ [10]). Dans le cas d'ions ou d'électrons localisés, les mobilités sont faibles, constantes quand le champ électrique varie et sont qualitativement en rapport avec le diamètre et la masse des particules.

Par exemple, la mobilité des ions A^+ est de 6.10^{-4} $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$. Dans l'hélium liquide, la mobilité des ions positifs et des électrons piégés est de l'ordre de 10^{-2} $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$. Dans les liquides organiques, la mobilité des ions positifs est de l'ordre de 10^{-3} $cm^2.V^{-1}.s^{-1}$, celle des ions négatifs (ou électrons piégés) est du même ordre de grandeur, quoique supérieure d'un facteur deux.

Les mobilités dépendent fortement de la constante diélectrique du liquide (influence de la polarisation) et de la sphéricité de la molécule organique (ordre à courte distance) [31]. La variation avec la température est en accord avec l'accroissement de l'énergie d'activation par rapport à l'énergie de liaison dans les pièges [28][32].

Il faut aussi noter que le déplacement des ions ou des cavités dans un liquide peut induire un déplacement de ce liquide [33] dont les effets peuvent masquer le déplacement des ions (la vitesse de déplacement du liquide étant quatre à dix fois plus grande que celle des ions ou cavités).

I.2.5 - Phénomènes de transport à fort champ électrique dans les gaz rares liquéfiés

I.2.5.1 - Mobilité et vitesse de déplacement

Les résultats expérimentaux montrent que la mobilité des électrons n'est pas constante et que la vitesse tend vers une valeur limite (saturation).

Ceci peut être expliqué par une meilleure efficacité de dissipation de l'énergie acquise dans le champ électrique par les électrons. Schockley [34] a traité le mouvement de l'électron dans un milieu cristallin en termes d'interaction avec les états de vibration du réseau. Ces états sont quantifiés, le quantum étant le phonon, de façon similaire aux photons. Il existe deux sortes de modes de vibration du réseau associés soit aux phonons acoustiques, soit aux phonons dits optiques, ces derniers ayant une fréquence de vibration donc une énergie plus élevée. A fort champ électrique, ce sont eux qui sont excités et permettent une dissipation plus efficace de l'énergie acquise dans le champ électrique. Ceci se traduit par un équilibre énergétique et donc par une saturation de la vitesse de déplacement des électrons.

Dans le cas d'un liquide monoatomique, il existe un ordre à courte distance et à court terme [22][35] ce qui se traduit par l'existence de "quasi phonons". Il n'existe pas de phonons optiques, ceux-ci étant caractéristiques de réseaux cristallins à mailles élémentaires polyatomiques.

Il est cependant possible d'évaluer la vitesse de déplacement des électrons dans un champ électrique élevé en postulant que les modes excités correspondent aux fréquences de "vibration" les plus élevées dans le liquide. En admettant qu'après chaque interaction avec les phonons, l'effet du champ électrique soit annulé, il existe un équilibre entre les taux de gain et de perte en énergie.

Si $\bar{\tau}$ est le temps moyen entre chaque collision, le taux d'énergie acquise par déplacement dans le champ électrique est :

$$\left(\frac{d\varepsilon}{dt}\right)_{\text{champ}} = \text{force} \times \text{accélération} \times \text{temps} = qE \times \frac{qE}{m} \times \bar{\tau}$$

avec : q, charge de l'électron
m, masse de l'électron
E, champ électrique
ε, énergie de l'électron.

Le taux maximal d'énergie dissipée par interaction avec les phonons est :

$$\left(\frac{d\varepsilon}{dt}\right)_{\text{phonons}} = \frac{h\nu}{\bar{\tau}}$$

avec : ν, fréquence maximale de vibration
h, constante de Planck

Il vient :

$$\frac{q^2E^2\bar{\tau}}{m} = \frac{h\nu}{\bar{\tau}}$$

ou : $$\tau = \frac{(m\ h\nu)^{1/2}}{qE}$$

La vitesse de déplacement est la moyenne du produit de l'accélération par le temps soit $\frac{qE\bar{\tau}}{2m}$

D'où : $$v_d = \frac{1}{2}\left(\frac{h\nu}{m}\right)^{1/2}$$

Les phonons se propagent à une vitesse voisine de la vitesse du son dans le milieu soit 850 m/s dans l'argon liquide [36]. La longueur d'onde maximale correspond à la vibration en opposition de phase de deux atomes voisins, donc est égale à deux fois la distance interatomique soit 7,5 Å à 85°K dans l'argon liquide [22].

Ceci correspond donc à une fréquence de vibration ν_o égale à $1{,}13.10^{12}$ Hz. En raison de l'ordre à courte distance il n'existe pas de valeurs discrètes de fréquence mais un spectre présentant un maximum pour une fréquence ν_m telle que $\nu_m = 0{,}25\ \nu_o$ [35].

Ces valeurs numériques conduisent à :

$$\bar{v}_d = 7{,}2.10^5 \text{ cm/s.}$$

Ce résultat est en assez bon accord avec la valeur expérimentale (8.10^5 cm/s) [10] malgré la nature grossière des hypothèses simplificatrices.

I.2.5.2 - Excitations lumineuses dans les gaz rares liquéfiés

De façon semblable à ce qui se produit dans les gaz, certains électrons sont assez énergétiques pour exciter les niveaux d'énergie des atomes [17]. Ces niveaux sont sensiblement les mêmes qu'en phase gazeuse avec un déplacement de 2 à 3 eV dans le rouge attribués à des molécules diatomiques excitées (type R_2^*) [17]. Ces états excités localisés sont appelés excitons.

I.3 - PHENOMENES DUS A LA DENSITE DES GAZ RARES LIQUEFIES

I.3.1 - Conséquences des chocs inélastiques

Soumis à un fort champ électrique, l'électron dissipe une forte partie de son énergie acquise par excitations collectives du système (phonons) ou localisées (excitons). Ces excitations peuvent être ionisantes avec éjection d'un électron ou se traduire par l'émission d'un photon.

Dans un gaz, le rapport K_p du nombre d'excitations avec émission d'un photon

au nombre d'ionisations dépend fortement du rapport champ électrique sur pression E/p [37]. Il est très important aux basses valeurs de E/p (E/p < 3).

Si un liquide est considéré comme un gaz fortement comprimé (500 à 1 000 atmosphères), l'effet de la densité se manifestera par un nombre important d'excitations lumineuses, ce que les expériences de claquage dans le xénon liquide tendent à prouver [38].

I.3.2 - Recombinaison en colonne

Les particules chargées ont un parcours réduit dans les liquides. Dans le cas de particules α, la densité d'ionisation est très grande, surtout en fin de parcours. Les paires de charges créées par la particule sont très proches et, malgré le champ électrique appliqué, un nombre important de ces charges se recombinent. La figure 7 en est un exemple pour les particules α du polonium (5,3 MeV) dans l'argon liquide d'après H.D. Pruett [39]. Le nombre de charges extraites des colonnes d'ions et d'électrons par le champ électrique dépend fortement de l'angle de la trace avec le champ électrique, la charge maximale étant collectée pour un angle de 90°.

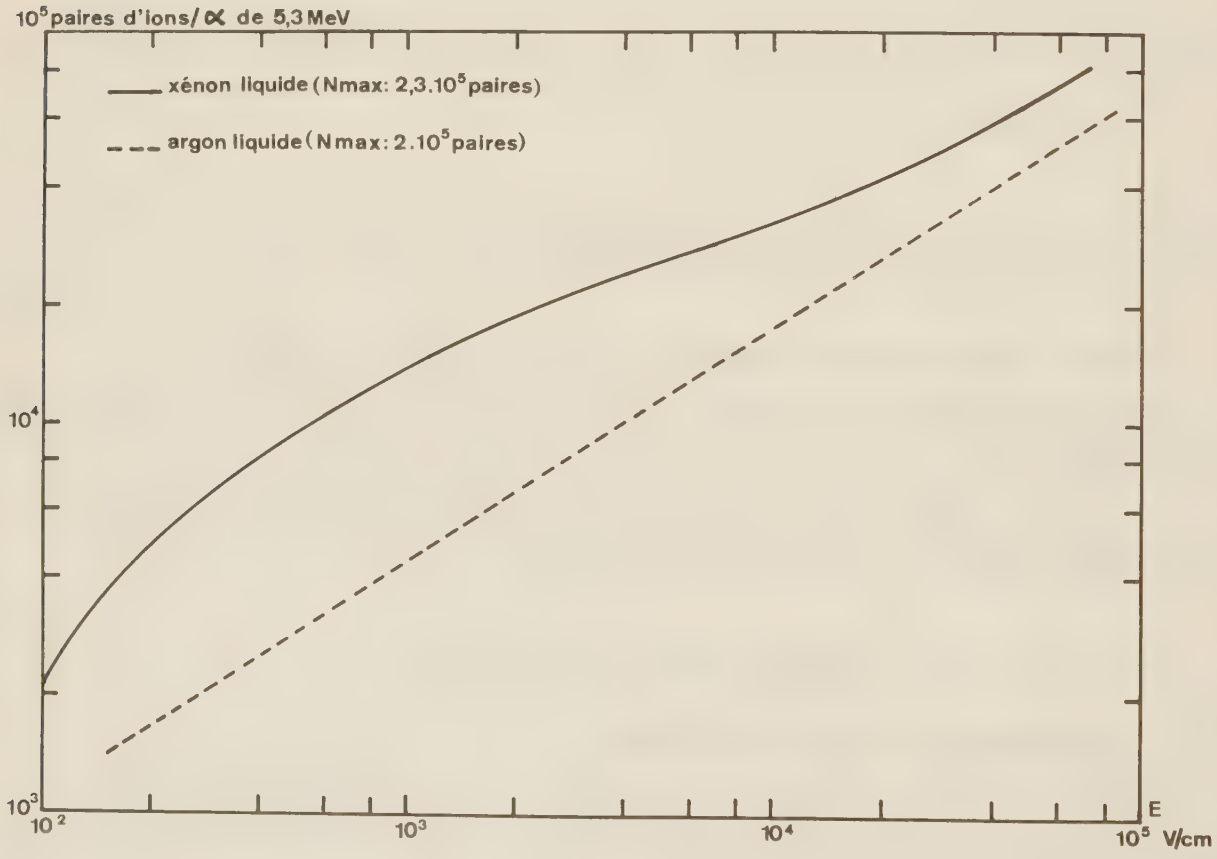


Figure 7 - Nombre d'ions collectés par particule α de 5,3 MeV dans l'argon et le xénon liquides en fonction du champ électrique (d'après la référence [39]).

Les différentes théories quantitatives [40] sur la recombinaison en colonne s'appliquent surtout au cas de recombinaison entre ions lourds et ne peuvent décrire la recombinaison entre électrons et ions telle qu'elle a lieu dans l'argon ou le xénon liquide.

En général, quel que soit le liquide, la loi empirique de variation du courant ou de la charge collectée par particule en fonction du champ électrique est de la forme [11] :

$$I = I_o\left(1-e^{-AE^n}\right) \quad \text{ou} \quad Q = Q_o\left(1-e^{-AE^n}\right)$$

avec I_o, Q_o, valeurs de I, Q pour une collection complète des porteurs ;
A, une constante ;
E, le champ électrique.

Une autre forme pour AE^n petit devant l'unité est :

$$I = I_o\ AE^n \qquad \text{ou} \quad Q = Q_o\ A\ E^n.$$

Dans les deux cas n est de l'ordre de 0,6 pour l'argon liquide et de l'ordre de 0,45 pour le xénon liquide [11][39].

Chapitre II

PREPARATION DES LIQUIDES

II.1 - PURIFICATION

II.1.1 - Nécessité

Les liquides correspondent à des gaz comprimés à des pressions comprises entre 500 et 1 000 atmosphères environ.

A teneur égale d'impuretés électronégatives, la section efficace macroscopique d'attachement (piégeage d'un électron par une impureté) est multipliée par un facteur 500 à 1 000 et, par suite, l'attachement augmente de deux à trois ordres de grandeur. Il convient donc de liquéfier des gaz très purs.

II.1.2 - Corps à éliminer

Les impuretés à éliminer contenues dans l'argon et le xénon sont, par ordre d'importance décroissante d'effet de piégeage : l'oxygène, l'azote, l'oxyde de carbone, les hydrocarbures, le gaz carbonique et l'eau.

Les teneurs maximales annoncées par le fournisseur sont, en phase gazeuse [41] :

- pour l'argon N45 (50 ppm d'impuretés au total)

oxygène : 5 ppm	méthane : 1 ppm
azote : 40 ppm	eau : 5 ppm
oxyde de carbone : 1 ppm	hydrogène : 1 ppm

- pour le xénon N35 (500 ppm d'impuretés au total)

oxygène : 3 ppm	hydrocarbures : 3 ppm
azote : 20 ppm	gaz carbonique : 1 ppm
oxyde de carbone : 1 ppm	eau : 5 ppm
méthane : 1 ppm	krypton : 450 ppm
	hydrogène : 2 ppm

Il est à remarquer que les autres impuretés sont soit des gaz rares (argon ou krypton, hélium ou néon), soit des gaz non électronégatifs (hydrogène).

II.1.3 - Procédés de purification

Il existe deux catégories de procédés de purification, ceux faisant appel aux "getters" métalliques et aux catalyseurs (réactions chimiques) et ceux basés sur l'absorption sélective des gaz (phénomènes physiques).

II.1.3.1 - Elimination de l'azote

L'épuration est basée sur la réaction de nitruration des métaux alcalins ou alcalino-terreux. Les nitrures formés doivent être stables. Les réactions avec les métaux choisis devront donc présenter des constantes d'équilibre favorables, c'est-à-dire des énergies libres de réaction les plus faibles possibles (la constante d'équilibre suivant une loi en $e^{-\frac{\Delta G_T}{KT}}$ avec ΔG_T : énergie libre, KT : énergie thermique). La figure 8 donne l'énergie libre de réaction pour différents métaux en fonction de la température [8]. Il apparaît donc que les réactions les plus favorables sont celles de nitruration du calcium, du magnésium et du zirconium.

La cinétique de ces réactions dépend, en grande partie, de l'état physique des métaux. Des particules métalliques à l'état solide se recouvrent d'une couche de nitrure qui fait ensuite écran entre les corps entrant en réaction.

Il est donc intéressant d'utiliser les métaux sous forme de vapeurs hautement réactives au-dessus d'une phase liquide. Ceci proscrit donc l'utilisation du zirconium qui fond à température élevée.

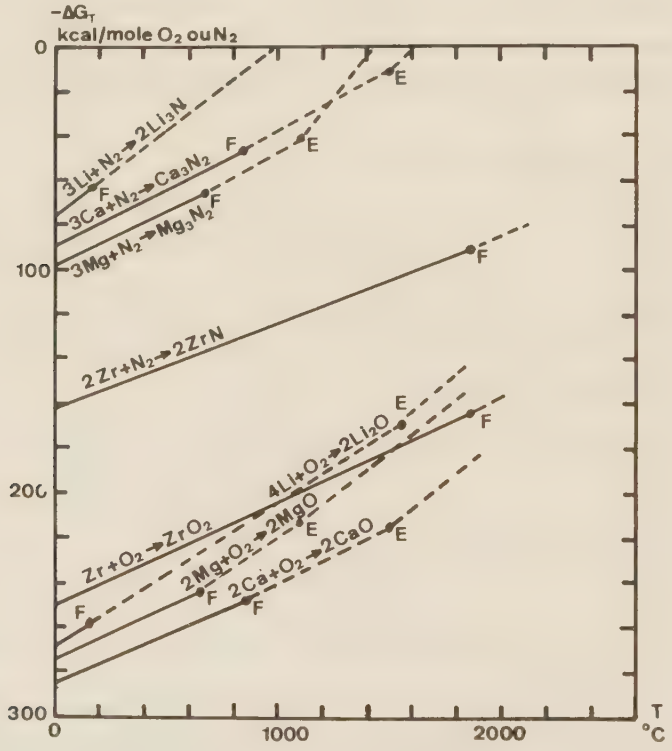


Figure 8 - Enérgie libre des réactions de nitruration et d'oxydation pour différents métaux en fonction de la température (d'après la référence [8]).

Le magnésium a été retenu en raison de son bas point de fusion (650°C) et de sa facilité de mise en oeuvre. Le réacteur est constitué d'une enveloppe en acier inoxydable contenant un creuset en fer à bas taux de carbone dans lequel se trouve le magnésium en fusion. La température de fonctionnement optimale est environ 780°C. La tension de vapeur est alors environ 20 torrs. Il est à noter que certaines réactions défavorables peuvent avoir lieu avec les nitrures [9] en présence d'eau ou d'oxygène, comme suit :

$$Mg_3 N_2 + 3H_2O \rightarrow 3MgO + 2NH_3$$
$$2Mg_3 N_2 + 5O_2 \rightarrow 6MgO + 4\ NO.$$

La réaction suivante est aussi possible :

$$2N_2 + O_2 \rightarrow 2N_2O$$

Ces corps sont très électronégatifs et seront éliminés dans un autre étage du système de purification placé en aval du réacteur à magnésium.

II.1.3.2 - Elimination de l'oxygène

II.1.3.2.1 - Réacteur à vapeur de magnésium

La figure 8 montre que les réactions d'oxydation avec les métaux alcalins ou alcalino-terreux sont très favorables. Ces métaux ont d'ailleurs plus d'affinité avec l'oxygène qu'avec l'azote.

II.1.3.2.2 - Réacteur à catalyseur B.T.S. [42]

Le B.T.S. est un mélange composé de cuivre finement divisé (30 % en poids) stabilisé sur un support et de différents additifs (oxyde de manganèse par exemple) d'activation.

Il peut agir de deux façons :

- comme masse catalytique.

En présence d'hydrogène ou d'oxyde de carbone, autour de 70°C, les réactions suivantes sont possibles [42] :

$$H_2 + 1/2O_2 \rightarrow H_2O \qquad \Delta H = -57{,}8 \text{ kcal}$$
$$CO + 1/2O_2 \rightarrow CO_2 \qquad \Delta H = -67{,}6 \text{ kcal.}$$

- comme adsorbant chimique sous sa forme réduite, au-dessus de 105°C :

$$Cu + 1/2O_2 \rightarrow CuO \qquad \Delta H = -37{,}1 \text{ kcal.}$$

Le réacteur est constitué d'un tube d'acier inoxydable entouré d'un four permettant de porter sa température à environ 120°C.

II.1.3.3 - Elimination des impuretés réductrices

Le B.T.S. sous sa forme oxydée peut être utilisé pour éliminer les impuretés réductrices dans les gaz inertes [42] :

$$CuO + H_2 \rightarrow Cu + H_2O \qquad \Delta H = -20{,}7 \text{ kcal}$$
$$CuO + CO \rightarrow Cu + CO_2 \qquad \Delta H = -30{,}5 \text{ kcal.}$$

II.1.3.4 - Elimination des impuretés polaires

Des traces de gaz carbonique, d'eau, de méthane et d'hydrocarbures plus lourds peuvent être présentes dans les gaz rares fournis. D'autre part, les réactions dans le réacteur à vapeurs métalliques peut générer des corps tels que l'ammoniac, les oxydes nitreux et nitriques. Nous avons effectivement remarqué, lors du démontage du four à magnésium, une forte odeur d'ammoniac produit lors de la réaction du nitrure de magnésium avec la vapeur d'eau de l'air

Un moyen simple de les éliminer est l'adsorption physique ou adsorption de Van der Waals, basée sur le fait que, lorsqu'il s'établit un équilibre entre une phase gazeuse et une surface solide, la concentration de molécules gazeuses est plus grande à proximité de la surface que dans le reste de la masse gazeuse (formation d'une couche quasi-liquide sur la surface).

Les adsorbants les plus couramment utilisés sont l'alumine, le gel de silice, le charbon de bois et les tamis moléculaires. Ces derniers sont plus intéressants car 60 % de leur volume apparent est constitué de cavités de diamètre constant [8]. En jouant sur la nature des tamis, donc sur le diamètre des pores, il est ainsi possible d'opérer des adsorptions sélectives.

La vitesse d'adsorption, donc la quantité adsorbée sera d'autant plus grande que le tamis est à plus basse température.

La figure 9 est un exemple montrant la quantité d'eau adsorbée sur le tamis moléculaire 4A en fonction de la pression et de la température [43].

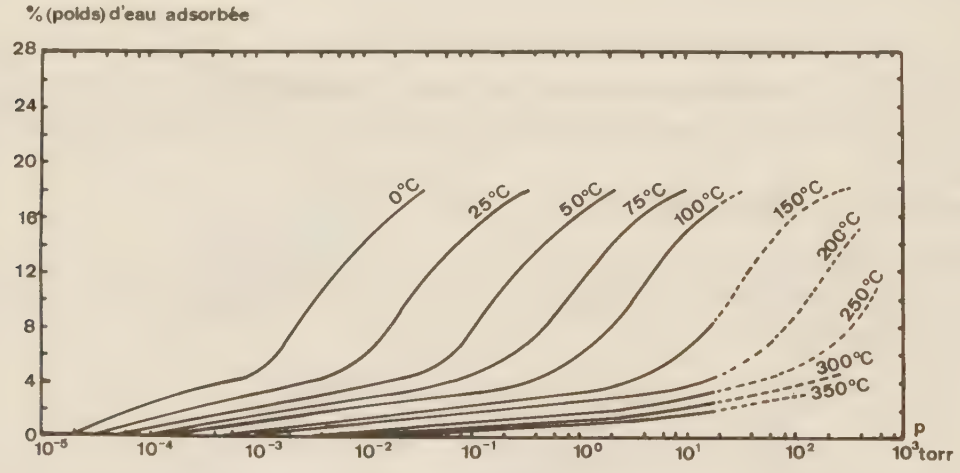


Figure 9 - Quantité d'eau absorbée par le tamis moléculaire 4A en fonction de la température et de la pression partielle de vapeur d'eau (d'après la référence [43]).

II.1.4 - Banc de purification

II.1.4.1 - Schéma

Dans un four à vapeurs métalliques des corps indésirables risquent de se former.

Les hydrocarbures peuvent y être craqués. Les produits de réaction

d'oxydation et de réduction dans le réacteur à B.T.S. produisent de l'eau et du gaz carbonique.

Le système de purification, inspiré des travaux d'autres groupes [8][9] est donc constitué, dans l'ordre, par :

- un four à magnésium,
- un réacteur à B.T.S.,
- une colonne de tamis moléculaire.

II.1.4.2 - Réalisation

II.1.4.2.1 - Description

Le schéma général de l'ensemble est présenté en figure 10 et la figure 11 est la vue d'ensemble du banc.

Afin d'éviter toute contamination, le banc a été réalisé en acier inoxydable, les joints et vannes étant aussi choisis métalliques et étuvables. Le four à magnésium (1) est un épurateur du commerce (débit maximal : 60 l/h, température de fonctionnement : environ 780°C).

Le four peut être isolé et mis hors circuit par une conduite shunt. Le réacteur à B.T.S. (2) est une colonne dont la température de fonctionnement est de 120°C.

Le piège à tamis moléculaire (3) est constitué par plusieurs colonnes contenant du tamis 4A (le tamis 4A adsorbant le moins le xénon) afin de présenter une plus grande surface en contact avec le réfrigérant. Ce piège est refroidi par de la neige carbonique à -78°C, le contact thermique étant assuré par de l'alccool.

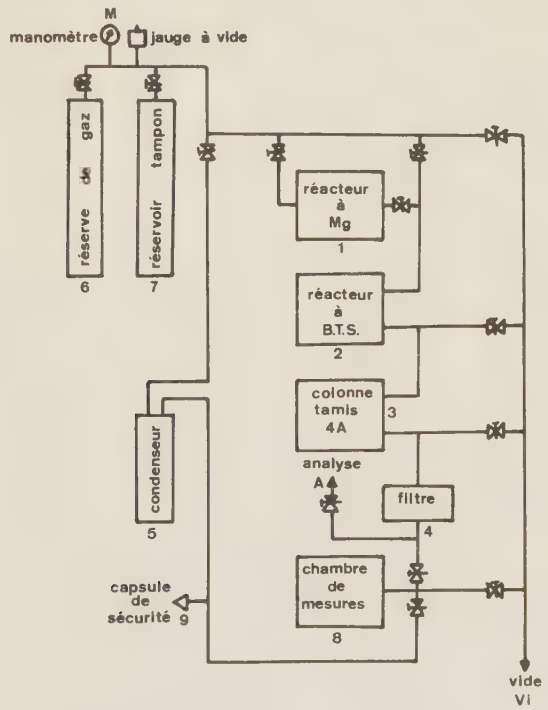


Figure 10 - Schéma général du banc de purification.

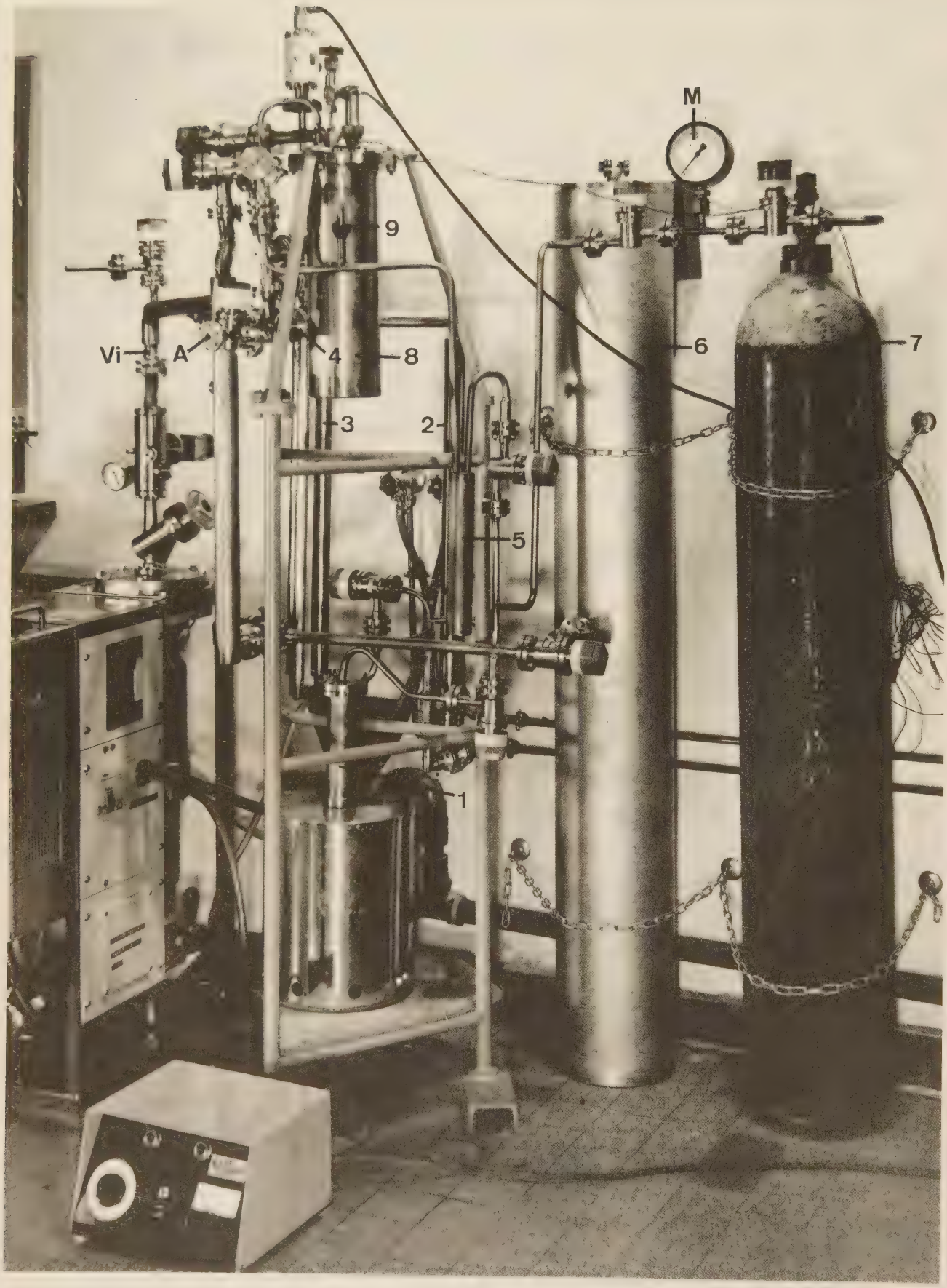


Figure 11 - Vue d'ensemble du banc de purification.

Un filtre (4) à micropores (diamètre moyen : 1 µ) a été rajouté afin d'éviter toute introduction dans la chambre de mesures de poussières générées par l'agitation des grains de réactif dans les colonnes sous l'action du flux de gaz.

Un recyclage ou un transvasement est possible par l'intermédiaire d'un condensateur (5) refroidi à l'azote liquide. Enfin, un volume tampon (6) servant de réserve de gaz permet de fonctionner en système complètement scellé, la sécurité étant assurée par une capsule d'éclatement en aluminium (pression maximale : 7 bars).

II.1.4.2.2 - Mise en oeuvre

Avant de commencer la purification, les opérations suivantes sont nécessaires :

- réduction du B.T.S. à 100°C sous flux d'argon hydrogéné à 10 %,
- évacuation de l'eau ainsi générée sous vide primaire (pompage en sens inverse du flux normal de gaz - température : 280°C),
- régénération du tamis moléculaire par pompage sous vide primaire puis secondaire en sens inverse du flux normal de gaz à 300°C,
- mise en route du four à magnésium sous vide, primaire (dégazage du magnésium)
- admission du gaz à purifier et isolement du système.

Le flux de gaz est assuré par la liquéfaction du gaz dans la chambre d'étude. Elle est suffisamment lente (3 à 5 heures) pour assurer un débit correct et un temps de présence suffisant au sein des réactifs.

II.1.4.3 - Analyses

Deux groupes de mesures sont possibles :

II.1.4.3.1 - Mesures directes

L'analyse par chromatographie en phase gazeuse a été retenue. Cependant, il n'existe aucun matériau de remplissage de colonne permettant de séparer l'argon et l'oxygène sauf si ces deux corps sont à l'état de traces (effet de débit ou saturation du détecteur lorsque l'un des constituants est présent en grandes quantités) [44]. Seule la teneur en azote est déterminée par chromatographie [45] sur une colonne de Porapak Q (diamètre : 4 mm, longueur 6 m), le temps de rétention correspondant (temps écoulé entre l'introduction de l'échantillon de gaz à analyser et la sortie du constituant considéré) étant plus court que celui de l'argon.

Pour le xénon, nous avons utilisé une colonne de tamis moléculaire 5A (longueur : 4 m, diamètre 4 mm, remplissage compact, refroidie à 0°C).

La détection des impuretés dans le gaz vecteur (hélium) est assurée par la mesure de la luminosité d'une décharge haute fréquence dans le gaz vecteur. Celle-ci varie quand les impuretés sont présentes dans le gaz. Les sensibilités obtenues sont du même ordre de grandeur que celles d'un détecteur à hélium métastable (de l'ordre de 10 à 100 ppb). En raison des faibles quantités à détecter, certaines précautions d'utilisation et de couplage au banc sont nécessaires [45] :

- purification du gaz vecteur (hélium 55) par passage dans deux pièges à tamis moléculaire 5A, le premier à température ambiante (pour l'eau et les hydrocarbures),

le second refroidi à l'azote liquide (pour les autres impuretés),

- emploi de canalisations, vannes et détendeurs dits "aseptiques",

- double régulation (double détente) de pression à l'entrée du chromatographe,

- régulation de pression en sortie du détecteur (légère surpression au moyen d'un manostat cartésien),

- purge soignée des canalisations avant mesure (dans le cas du xénon où il n'est pas possible de purger avec ce même gaz, ceci est effectué par un flux de gaz vecteur purifié).

Dans le cas du xénon, les mesures ont fait apparaître des différences sensibles entre les compositions des échantillons correspondants à la phase gazeuse au-dessus du liquide (en fin de liquéfaction) et à la phase liquide (échantillon pris en fin d'évaporation).

Ceci peut être expliqué par la faible solubilité de l'azote, de l'oxygène, du krypton et du méthane dans le xénon liquide. Les teneurs correspondent donc approximativement aux quantités d'impuretés contenues dans le volume de gaz nécessaire pour remplir complètement la chambre de liquide.

Ceci permet aussi d'estimer de façon plus précise la teneur en impuretés (effet de concentration).

Les mesures conduisent aux teneurs limite suivantes :

Gaz à analyser / Impuretés	Argon	Xénon
O_2	-	40 ppb
N_2	2 ppm	115 ppb
A	-	2,2 ppm
CH_4	-	50 ppb

II.1.4.3.2 - Mesures indirectes

Les mesures de charge collectée en fonction du champ électrique dans une chambre d'ionisation fournissent des indications quant au taux global d'impuretés (c.f. paragraphes III.1 et 2). En fait, il est pratique de ramener ce taux à une teneur équivalente en oxygène.

La figure 12 montre la charge collectée en chambre plane pour différents liquides.

Le rayonnement utilisé est le rayonnement α de l'américium 241 (5,5 MeV). Ces particules sont fortement ionisantes et par conséquent, la recombinaison en colonne est importante.

Les mesures étant faites à fort champ électrique, l'attachement est faible. D'autre part, le mécanisme de la variation de la recombinaison en colonne en fonction du taux et de la nature des impuretés est mal connu. Il est donc difficile de séparer les effets dus à la recombinaison et à l'attachement. Par suite, ces

mesures ne donnent qu'une appréciation qualitative du taux d'impuretés.

Par contre, en chambre d'ionisation cylindrique, le champ électrique sur la cathode est faible, la loi de variation de la quantité de charges collectée en fonction de la teneur en impuretés est relativement simple.

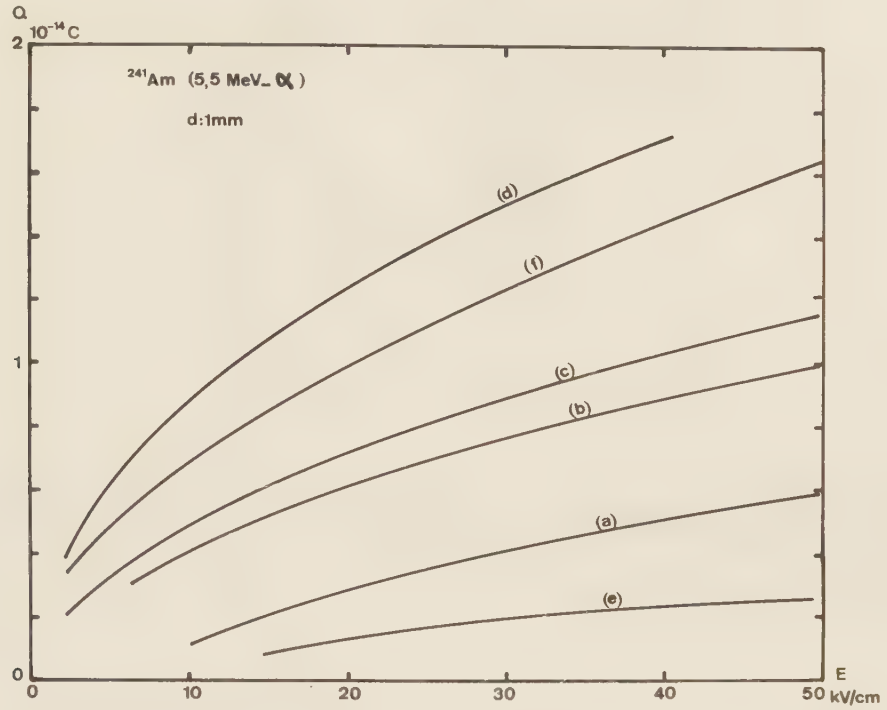


Figure 12 - Charge collectée en fonction du champ électrique en géométrie plane pour : a - argon fourni liquide (charge maximale créée dans l'argon : $3{,}3.10^{-14}$C),
b - argon liquéfié sur place,
c - argon liquide purifié (un passage sur tamis 4A à 25°C, BTS à 120°C et four Mg à 780°C),
d - argon liquide purifié (deux passages sur tamis 4A à -78°C, BTS à 120°C et four Mg à 780°C),
e - argon-méthane liquides à 8,5 °/₀₀ de méthane,
f - xénon liquide purifié (charge maximale créée : $3{,}9.10^{-14}$C).

De plus, en choisissant des rayonnements faiblement ionisants (électrons photoélectriques ou Compton), il est possible de donner une estimation plus précise. Aux faibles concentrations d'oxygène, Zaklad [9] a déduit de ses mesures dans une chambre de 8 mm de diamètre (anode de diamètre 20 μ et champ sur la cathode : 800 V/cm) une courbe donnant la charge collectée (source de ^{65}Zn-1,1 MeV) en fonction de la teneur en oxygène (figure 13).

La figure 14 montre nos résultats pour l'argon et le xénon liquide (diamètre de la cathode : 17 mm - diamètre de l'anode : 0,2 mm - source : ^{60}Co).

A partir de nos mesures et de l'étalonnage de Zaklad, la pureté des liquides est estimée respectivement pour l'argon et le xénon liquides à 110 ppb et 80 ppb

équivalents d'oxygène (c.f. paragraphe III.3.2).

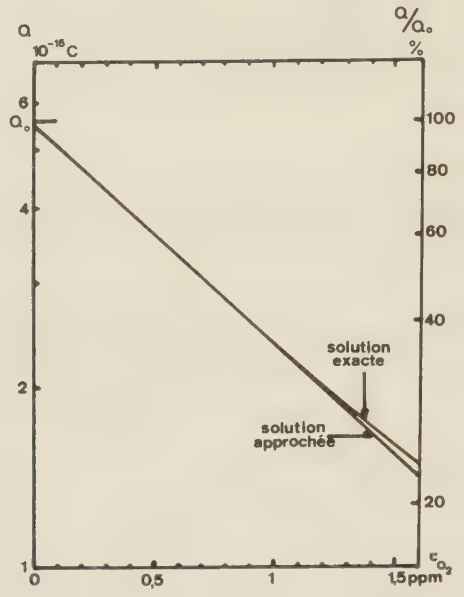


Figure 13 - Charge collectée en fonction de la teneur en oxygène en chambre cylindrique (diamètre anode : 20 µ, diamètre cathode : 8 mm, tension :2 000 V isotope : ^{65}Zn - 1,1 MeV, champ électrique sur la cathode : 800 V/cm) d'après la référence [9].

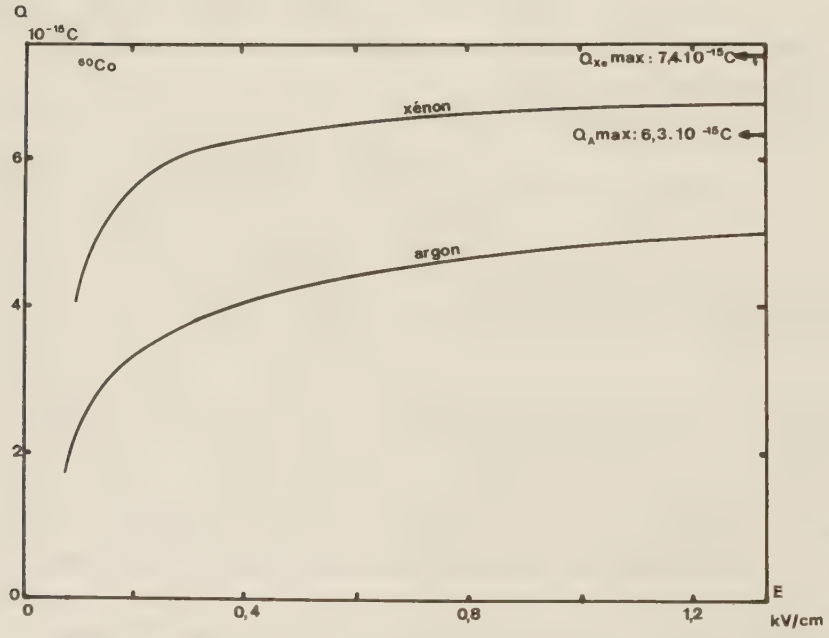


Figure 14 - Charge collectée en fonction du champ électrique sur la cathode dans l'argon et le xénon liquides. (Rayonnement incident ^{60}Co, rayon de l'anode : 0,1 mm - rayon de la cathode : 8,5 mm).

II.2 - CRYOGENIE

Le schéma de l'ensemble est représenté en figure 15.

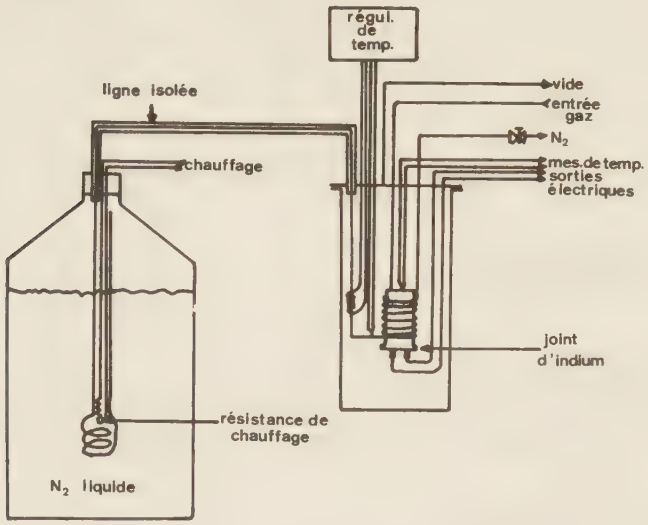


Figure 15 - Schéma de l'ensemble cryogénique.

II.2.1 - Source de frigories

Elle sert :

- à refroidir et liquéfier le gaz,
- à compenser les pertes thermiques du dispositif cryogénique.

Nous avons utilisé un courant d'azote gazeux refroidi à une température proche de celle du liquide. Les vapeurs sont générées grâce à une résistance chauffante placée dans le liquide. Elles sont ensuite refroidies, par passage dans un serpentin plongé dans le liquide et dirigées vers l'échangeur de la chambre de liquéfaction par une ligne de transfert isolée thermiquement.

En sortie de l'échangeur, le débit est réglé par une vanne pointeau après que les vapeurs se soient réchauffées dans un tube de cuivre, ceci pour éviter le givrage de la vanne.

Un mano-contacteur permet de garder constante la pression dans le vase d'azote. Une soupape de sécurité limite la pression sur le vase en cas d'obstruction des canalisations.

Il est possible d'estimer le puissance nécessaire au fonctionnement.

Les pertes estimées P_P du dispositif (siphon plus cryostat) sont de l'ordre de 2,5 W [46]. La chambre d'étude ayant un volume de 200 cm^3 environ, elle sera remplie d'argon liquide en 5 heures lorsqu'il aura été perdu $P_L = \frac{Q_A \times m \times 4,18}{t}$, Q_A étant la chaleur de liquéfaction de l'argon, m la masse de liquide et t la durée de liquéfaction, soit P_L = 2,5 W.

La puissance minimale P_m nécessaire sera donc environ 5 W.

La puissance à fournir à la résistance chauffante sera :

$P_f = \frac{P_m \times Q_N}{C_N \times \Delta T}$ avec Q_N chaleur de vaporisation de l'azote, C_N chaleur spécifique de l'azote gazeux à -180°C, ΔT écart entre les températures à l'entrée et à la sortie de l'échangeur de la chambre.

Avec $\Delta T = 10°C$, la valeur de P_f est 100 W. La consommation horaire d'azote liquide sera $N = \frac{P_f \times 3\,600}{Q_N \times \rho}$ avec ρ masse spéficique de l'azote liquide,

d'où $N = 2,2$ l/h.

Un vase de 200 l donnera donc une autonomie suffisante.

II.2.2 - Chambre de liquéfaction

Elle doit :

- être isolée thermiquement,
- assurer l'échange des "frigories" des vapeurs avec le liquide, permettre la mise en place des électrodes et la sortie des signaux électriques.

II.2.2.1 - Isolation thermique

Elle est assurée par :

- une isolation par vide secondaire ($p \simeq 10^{-5}$ torr à -170°C),
- un écran thermique en cuivre porté à la température de sortie des vapeurs (environ -150°C) et interceptant le rayonnement de la paroi extérieure du cryostat,
- des supports mécaniques longs et de faible section en métal mauvais conducteur de la chaleur (3 tiges de 2 mm de diamètre et de 25 cm de longueur en acier inoxydable),
- des tuyaux d'arrivée et de sortie de vapeurs et d'arrivée de gaz aussi minces que possible en acier inoxydable,
- des fils de liaison électrique très minces (diamètre 0,1 mm en laiton).

II.2.2.2 - Liaisons avec l'extérieur

Les autres points sont satisfaits grâce à :

- un serpentin d'échange et une paroi de contact en cuivre (le serpentin est enroulé en spirale double afin de réduire les gradients de température sur les parois de la chambre),
- une bride homogène en acier inoxydable prévue pour recevoir un joint d'indium (non contaminant et étuvable à 110°C),
- des sorties électriques verre-métal ou céramique-métal étanches au vide poussé et résistant aux changements de température.

La mesure de la température est assurée par un thermocouple chromel-alumel soudé sur la partie fixe de la chambre.

II.2.3 - Régulation en température

La figure 16 montre les courbes de changement d'état de l'argon et du xénon. A la pression atmosphérique, l'argon est liquide entre -189°C et -186°C et le xénon entre -112°C et -107°C.

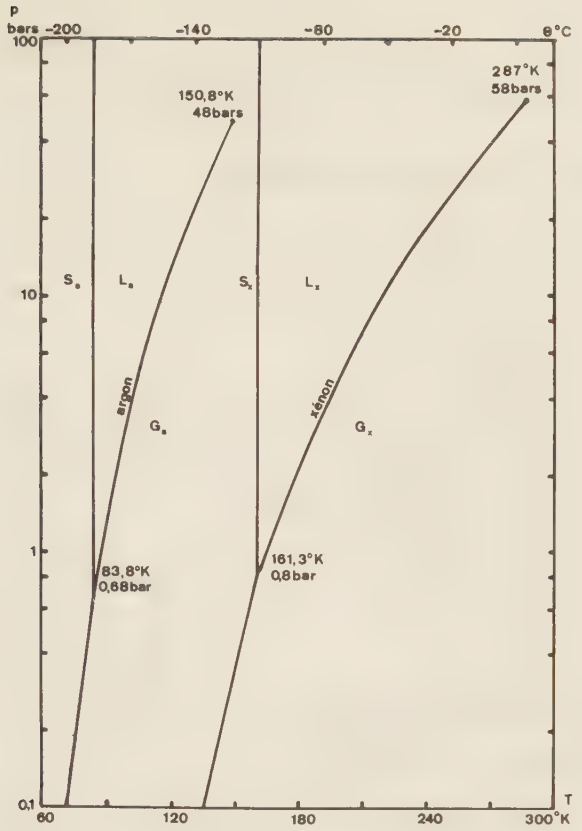


Figure 16 - Courbes de changement d'état de l'argon et du xénon (d'après la référence [47]).

Afin d'augmenter la plage de température correspondant à l'état liquide, nous travaillons à des pressions de l'ordre de 1,5 à 2 bars. Le point de fonctionnement est alors amené dans la zone où l'élément est liquide, en dehors des courbes d'ébullition, pour éviter la présence de bulles.

A cause des pertes dans la ligne de transfert et de l'importance de la masse thermique de l'ensemble froid, il n'est pas utile de réguler la température de la chambre dans le cas de l'argon (température de l'azote liquide à 1,5 bars : -193°C).

Il suffit de régler le débit à une valeur adéquate et de pressuriser la chambre pour être certain que le point de fonctionnement n'est pas sur la courbe de changement d'état. La stabilité mesurée est de ± 0,25°C sur 5 heures et de ±0,5°C sur 24 heures.

Par contre le réglage de la température par une action sur le débit dans le cas du xénon est beaucoup plus instable (trop grande différence de température). Il est alors nécessaire de réchauffer le gaz réfrigérant et de réguler sa température.

Celle-ci est régulée en un point situé en amont de l'échangeur et faiblement couplé thermiquement avec celui-ci (pour éviter des oscillations dues à la grande masse thermique de la chambre pleine de liquide).

La chaîne est un asservissement classique à action proportionnelle, intégrale et dérivée dont le schéma est représenté en figure 17.

Les mesures montrent que la température du liquide est stable à ± 0,15°C sur une période de 24 heures.

Afin d'assurer un débit quasi-constant de gaz à liquéfier, le point de consigne de l'asservissement est déplacé lentement (en 2 heures 30 pour assurer une liquéfaction en 4 heures).

La figure 18, montre des courbes typiques de liquéfaction pour l'argon et le xénon.

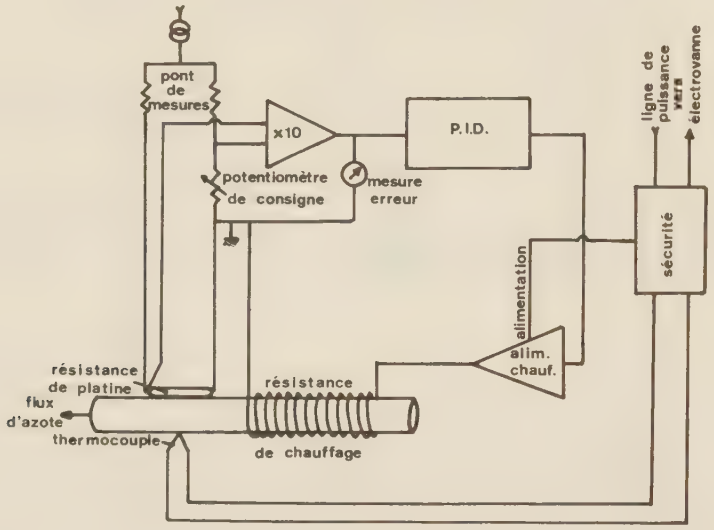


Figure 17 - Schéma de la chaîne de régulation de température.

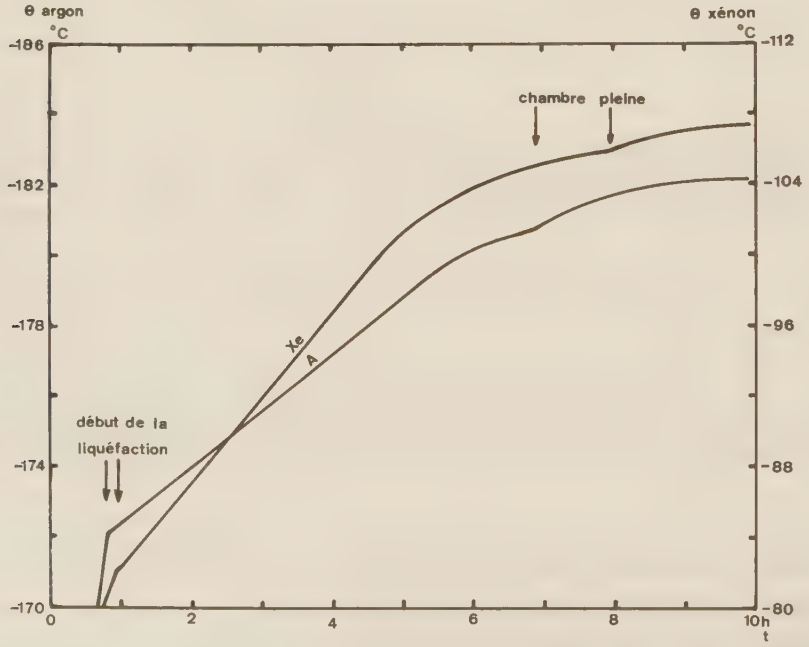


Figure 18 - Courbes typiques de liquéfaction relatives à l'argon et au xénon.

Chapitre III

FONCTIONNEMENT EN CHAMBRE D'IONISATION A IMPULSIONS

Nous ne nous sommes intéressés qu'à la collection directe des électrons, les chambres fonctionnement en "impulsions".

III.1 - LA CHAMBRE A ELECTRODES PLANES ET PARALLELES

III.1.1 - Généralités

Les électrodes sont deux plateaux parallèles. Le champ dans l'espace inter-électrodes est donc uniforme.

Les électrons créés dans l'espace de détection induisent des charges sur les électrodes qui sont converties en tension par un amplificateur de tension à constantes de temps d'intégration et de dérivation réglables afin d'améliorer le rapport signal sur bruit [48].

Un étalonnage de la chaîne est aussi possible (injection d'un front de tension V sur l'entrée de l'amplificateur de charge par l'intermédiaire d'une capacité C, d'où la quantité de charges $Q = C.V$ - pour C = 1pF et V = 10 mV, $Q = 10^{-14}$C). L'étalonnage en énergie est possible lorsque la valeur de l'énergie moyenne d'ionisation $\overline{W}$ est connue. Le bruit crête d'une chaîne courante exprimé en charges ramenées à l'entrée est de l'ordre de 10^{-15} C.

Les impulsions sont ensuite traitées dans un sélecteur multicanal. La spectrométrie d'amplitude représente donc la spectrométrie en énergie.

III.1.2 - Signaux électriques recueillis

III.1.2.1 - Charge ponctuelle - Attachement et recombinaison nuls

Sous l'action du champ électrique, la charge électronique Q_o, suffisamment faible pour ne pas perturber le potentiel, se déplace vers l'anode et y induit une charge dQ proportionnelle au changement de potentiel relatif $\frac{dV}{V}$ vu par la charge (l'énergie perdue par la charge est fournie par la source de tension constante V_o appliquée entre les électrodes),

d'où $\quad V_o\, dQ = Q_o\, dV$

Le champ étant uniforme,

$$dV = -E\, dl$$

ou $$dV = \frac{V_o}{d}\, \overline{v_d}\, dt$$

avec E, champ électrique
dl, élément de déplacement vers l'anode
d, distance inter-électrodes
$\overline{v_d}$, vitesse de déplacement des électrons
dt, intervalle de temps,

d'où $dQ = Q_o \frac{\overline{v_d}}{d} dt$ et $Q = Q_o \frac{\overline{v_d}\, T}{d} = Q_o \frac{1}{d}$

avec T, temps de transit,
1, distance parcourue par les charges.

Le courant induit est constant pendant le temps T et a pour valeur $Q_o \frac{\overline{v_d}}{d}$.

III.1.2.2 - Cas de l'ionisation créée par une interaction nucléaire

Des charges de natures différentes existent :

- des électrons rapides de temps de transit T_e,
- des ions lents de temps de transit T_i. Les vitesses de déplacement sont très différentes :

$$\overline{v}_{de} \simeq 1\,000\ \overline{v}_{di}$$

ou $$T_i \simeq 1\,000\ T_e$$

La constante de temps de dérivation ne permettra que l'observation de la collection électronique.

III.1.2.3 - Spectres d'amplitude (ou d'énergie)

L'amplitude dépend de l'endroit où est créée la charge.

III.1.2.3.1 - Rayonnement α - source sur la cathode - Attachement et recombinaison nuls

Leur parcours R_α est très réduit dans les liquides.

Le centre de gravité du nuage des charges est à environ les trois cinquièmes du parcours R_α total à partir de la cathode [50].

Si la source émet isotropiquement, le spectre sera une raie uniforme de largeur $\frac{3R_\alpha}{5\,d} Q_o$ et d'amplitude maximale Q_o.

III.1.2.3.2 - Rayonnement X ou γ

L'interaction a lieu dans tout le volume.

Le spectre est donc uniforme de la charge nulle à la charge maximale si la probabilité d'interaction dans tout le volume est constante, sauf dans le cas de forte absorption, et s'il est possible de négliger les effets de parois.

III.1.2.4 - Cas où il existe un effet de recombinaison

Dans le cas de particules chargées lourdes, l'effet de la recombinaison en colonne est plus important pour les traces perpendiculaires à la cathode que pour

les traces parallèles à la cathode. Le spectre sera donc élargi, la quantité de charges maximale étant inférieure à la quantité de charges théorique.

III.1.2.5 - Effet de l'attachement

Si β est le coefficient d'attachement, le nombre d'électrons qui disparaissent par élément de longueur dl est :

$$dn = n\beta dl \quad \text{(équation de définition de } \beta\text{)}$$

En intégrant, il vient :

$$n = n_o\, e^{-\beta l} \quad \text{ou} \quad Q = Q_o\, e^{-\beta l}$$

Pour βl petit, la relation s'écrit :

$$Q \# Q_o(1-\beta l)$$

La charge induite par élément de longueur sera :

$$dQ = Q(l)\,\frac{dl}{d} = Q_o\, e^{-\beta l}\,\frac{dl}{d}$$

d'où la charge induite :

$$Q = Q_o\,\frac{1 - e^{-\beta l}}{\beta d}$$

La charge maximale collectée est :

$$Q = Q_o\,\frac{1 - e^{-\beta d}}{\beta d} \quad \text{(voir figure 19)}$$

ou, pour βd petit : $Q \# Q_o \left(1-\frac{\beta d}{2}\right)$

Dans le cas où la charge est créée à une distance lo de la cathode :

$$Q = Q_o\,\frac{1 - e^{-\beta(d-lo)}}{\beta d}$$

ou pour βd petit : $Q = Q_o(lo)\left|1-\frac{\beta(d-lo)}{2}\right|$

avec $Q_o(lo) = Q_o\,\frac{d - lo}{d}$

Le spectre d'amplitude sera toujours une raie mais de largeur différente.

III.1.2.6 - Conclusion

La chambre d'ionisation plane est bien adaptée :

- à la détection de particules chargées lourdes de parcours faible devant l'épaisseur de la chambre et d'énergie suffisante pour être détectables électroniquement (énergie supérieure à 500 keV),

- à l'étude de phénomènes en champ uniforme (attachement, recombinaison, mobilité des électrons).

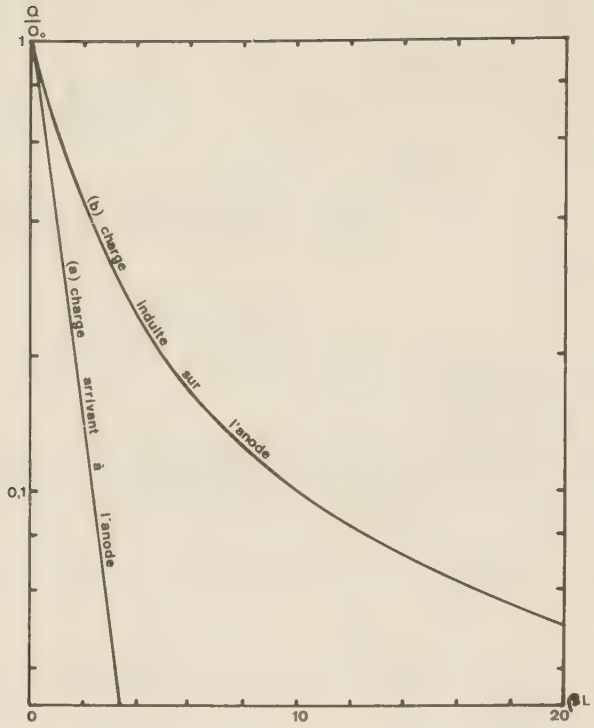


Figure 19 - Fraction de la charge théorique créée a) arrivant à l'anode, b) induite sur l'anode, en géométrie plane en fonction de l'attachement.

III.2 - LA CHAMBRE A ELECTRODES CYLINDRIQUES ET COAXIALES

C'est une chambre où l'anode a un diamètre beaucoup plus petit que la cathode.

Les charges induites sont exploitées de la même manière qu'en III.1.1.

III.2.1 - Signaux électriques recueillis sur l'anode

III.2.1.1 - Charge ponctuelle

La charge induite est proportionnelle au changement relatif de potentiel :

$$dQ = Q_o \frac{dV}{V_o}$$

Si r est la distance de l'anode au point où est créée la charge, r_A et r_K les rayons de l'anode et de la cathode,

alors :
$$dV = \frac{V_o}{r \text{Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

d'où :
$$dQ = Q_o \frac{dr}{r \text{Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

En intégrant :

$$Q = Q_o \frac{\text{Log } \frac{r}{r_A}}{\text{Log } \frac{r_K}{r_A}}$$

III.2.1.2 - Spectre d'amplitude

III.2.1.2.1 - Nombre d'interactions en fonction de r

Dans le cas où les interactions ont lieu dans tout le volume avec une densité uniforme N_o par unité de volume, il vient :

$$\frac{dn}{dr} = 2\pi N_o r = K_1 r$$

avec n, nombre d'interaction par unité de longueur de chambre.

Dans le cas où il y a une atténuation du rayonnement avec un coefficient d'atténuation μ (avec $\mu r_K << 1$), il vient alors :

$$\frac{dn}{dr} = 2 \pi r I_o \mu e^{-\mu r_K} = K_2 r$$

avec I_o, intensité de la source.

III.2.1.2.2 - Calcul du spectre d'amplitude

La relation suivante permet de calculer le spectre théorique dans le cas où la quantité de charges créée est constante (effet photoélectrique par exemple) :

$$\frac{dn}{dQ} = \frac{dn}{dr} \frac{dr}{dQ}$$

ou $\frac{dn}{dr} = Kr$ avec K une constante

et $r = r_A \left(\frac{r_K}{r_A}\right)^{Q/Q_o}$ (paragraphe III.2.1.1).

Donc :

$$\frac{dr}{dQ} = \frac{r}{Q_o} \text{Log } \frac{r_K}{r_A}$$

et par suite :

$$\frac{dN}{dQ} = \frac{K r_A^2}{Q_o} \left[\text{Log } \frac{r_K}{r_A}\right] \left(\frac{r_K}{r_A}\right)^{2Q/Q_o} .$$

III.2.1.2.3 - Influence de l'effet Compton

Les charges créées par les électrons Compton ont toutes des valeurs comprises entre 0 et Q_{max}

avec $$Q_{max} = \frac{q}{\overline{W}} \frac{2 \mathcal{E}^2}{2 \mathcal{E} + m_o c^2} \quad [21]$$

($\mathcal{E}$: énergie du rayonnement incident, $\overline{W}$: énergie moyenne d'ionisation, q : charge

de l'électron, $m_o c^2$: énergie de masse de l'électron).

Soit $\frac{dN}{dQ_o} = f(Q_o)$ le spectre d'amplitude dû à l'effet Compton.

Le spectre final sera :

$$\frac{dN}{dQ} = K \text{ Log } \frac{r_K}{r_A} r_A^2 \int_Q^{Q_{max}} \frac{f(Q_o)}{Q_o} \left(\frac{r_K}{r_A}\right)^{2Q/Q_o} dQ_o$$

La figure 20 représente les spectres théoriques pour différentes fonctions $f(Q_o)$.

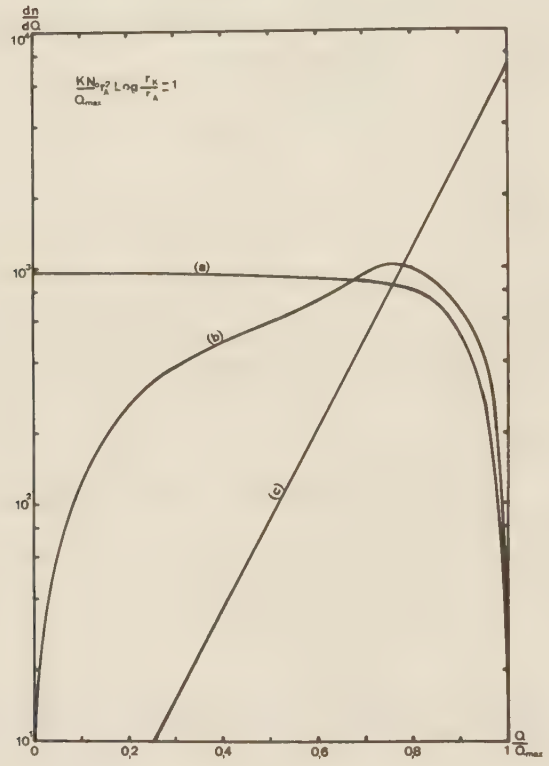


Figure 20 - Spectres théoriques en chambre cylindrique pour différentes fonctions $f(Q_o)$ avec $\frac{r_K}{r_A} = 85$

a) $f(Q_o) = N_o$ pour $0 < Q < Q_{max}$

b) $f(Q_o) = N_o \frac{Q}{Q_{max}}$

c) $f(Q_o) = N_o$ pour $Q = Q_{max}$

$f(Q_o) = 0$ pour $Q \neq Q_{max}$ (raie monoénergétique).

III.2.1.3 - Influence de l'attachement

Généralement l'attachement varie avec le champ électrique selon une loi en

E^{-a} (E, champ électrique). Pour l'azote a = 1 et pour l'oxygène a ≈ 1,5 pour E > 10 kV/cm [49].

De même qu'en III.1.2.5 :

$$dn = n\beta dl$$

ou $dn = n\,AE^{-a}\,dr$ (avec A, une constante).

Or :
$$E = \frac{V_o}{r \operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

Donc :
$$dr = -\frac{V_o\,dE}{E^2 \operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

et
$$dn = -\,n\,\frac{A\,V_o}{\operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}}\,E^{-(a+2)}\,dE$$

En intégrant :

$$\operatorname{Log} \frac{n}{n_o} = \frac{A\,V_o}{\operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}} \cdot \frac{E^{-(a+1)} - E_o{}^{-(a+1)}}{a+1}$$

$$= \frac{A\,V_o^{-a}}{\operatorname{Log}^{-a} \frac{r_K}{r_A}} \cdot \frac{r^{a+1} - \rho^{a+1}}{a+1}$$

en appelant ρ la distance de la réaction nucléaire à l'axe de la chambre et E_o le champ correspondant.

La charge induite sera :

$$Q = \int_{r_A}^{\rho} Q(r)\,\frac{dV}{V_o}$$

$$Q = \frac{Q_o}{\operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}} \left[e^{-\left\{ \frac{A\rho}{(a+1)E_o{}^a} \right\}} \right] \int_{r_A}^{\rho} \frac{e^{\left\{ \frac{Ar}{(a+1)E^a} \right\}}}{r}\,dr$$

En remarquant que $\frac{A}{E^a} = \beta(r)$ et en développant $\frac{e^{\left\{ \frac{\beta(r)r}{a+1} \right\}}}{r}$ en série, il vient :

$$\frac{Q}{Q_o} = \frac{e^{-\left\{ \frac{\beta(\rho)\rho}{a+1} \right\}}}{\operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A}} \left[\operatorname{Log} \frac{\rho}{r_A} + \sum_{q=1}^{\infty} \frac{\beta^q(\rho)\rho^q - \beta^q(r_A) r_A{}^q}{q.q!\ (a+1)^q} \right]$$

ou, en supposant $\rho >> r_A$

$$\frac{Q}{Q_o} = \frac{e^{-\left\{\frac{\beta(\rho)\rho}{a+1}\right\}}}{\text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}} \left[\text{Log}\,\frac{\rho}{r_A} + \sum_{q=1}^{\infty} \frac{\beta^q(\rho)\rho^q}{q.q!(a+1)^q} \right]$$

En première approximation, il est possible d'écrire :

$$\frac{Q}{Q_o} \neq \left[e^{-\left\{\frac{\beta(\rho)\rho}{a+1}\right\}} \right] . \frac{\text{Log}\,\frac{\rho}{r_A}}{\text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}}$$

Pour $\rho = r_K$: $\frac{Q}{Q_o} \neq e^{-\left\{\frac{\beta(r_K)\, r_K}{a+1}\right\}}$

La figure 21 montre les solutions exactes et approchées pour Q/Q_o en fonction de l'attachement.

Figure 21 - Fraction de la charge créée

a) Arrivant effectivement sur l'anode (c'est aussi la solution approchée pour la charge induite sur l'anode).

b, c, d) charge induite sur l'anode avec $\alpha = 0, 1, 2$ en chambre cylindrique avec $\frac{r_K}{r_A} = 85$ et la charge créée sur la cathode.

Il est à remarquer que, si Q_{in} et Q_{ar} sont les charges induites et arrivant sur l'anode, en chambre cylindrique :

$$Q_{in} = Q_{ar}$$

En chambre plane, pour d petit, Q_{in} et Q_{ar} sont liés par la relation :

$$Q_{in} = \frac{Q_o + Q_{ar}}{2}$$

donc Q_{in} est donc très supérieure à Q_{ar}.

En chambre cylindrique, pour certaines valeurs de ρ et $\beta(\rho)$ il se peut que Q_{max} soit différent de $Q(r_K)$. La figure 22 montre les fonctions Q_{max} de $Q(r_K)$ pour a = 0, 1, 2.

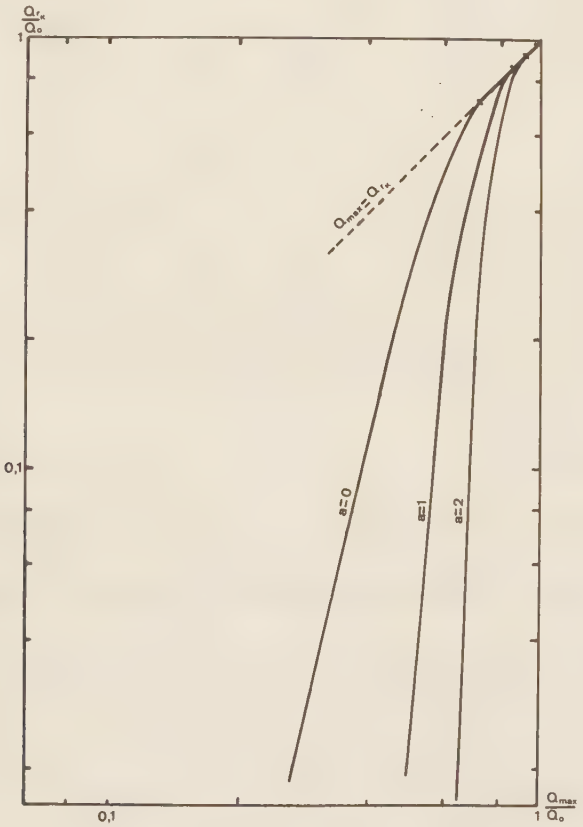


Figure 22 - Charge maximale induite en chambre cylindrique en fonction de la charge induite due à une interaction près de la cathode (cas de a = 0, 1, 2).

III.2.1.4 - Influence de l'attachement sur la forme du spectre d'amplitude

Comme en III.2.1.2 , $\frac{dn}{dQ} = \frac{dn}{dr}\frac{dr}{dQ} = Kr\frac{dr}{dQ}$

Or, d'après le paragraphe précédent :

$$Q = \frac{Q_o}{\text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}} \int_{r_A}^{r} \frac{e^{-\frac{r\beta(r)-p\beta(p)}{a+1}}}{p}\, dp$$

avec p, variable muette d'intégration. Par suite :

$$dQ = \frac{Q_o}{\text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}} \left[-\beta(r) \int_{r_A}^{r} \frac{e^{-\frac{r\beta(r)-p\beta(p)}{a+1}}}{p}\, dp + \frac{1}{r} \right]$$

$$= \frac{-\beta(r)\ rQ\ \text{Log}\,\frac{r_K}{r_A} + Q_o}{r\ \text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}}$$

D'où $$\frac{dn}{dQ} = \frac{Kr^2\ \text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}}{Q_o\left[1-\beta(r)\ r\ \frac{Q}{Q_o}\ \text{Log}\,\frac{r_K}{r_A}\right]}$$

La figure 23 montre l'évolution du spectre d'amplitude en fonction de l'attachement pour a = 0, 1.

III.2.1.5 - Conclusions

La chambre d'ionisation cylindrique est assez bien adaptée à la détection de rayonnements faiblement ionisants (électrons, électrons de réaction avec des rayonnements X ou γ) de forte énergie (supérieure à 500 keV) pour être détectables électroniquement.

Dans le cas où l'attachement est non négligeable, l'influence de celui-ci est la plus importante dans la région de faible champ électrique, c'est-à-dire près de la cathode.

Le champ électrique étant beaucoup plus faible que dans une chambre plane, l'étude de l'attachement aux faibles concentrations d'impuretés électronégatives sera plus aisée en chambre cylindrique.

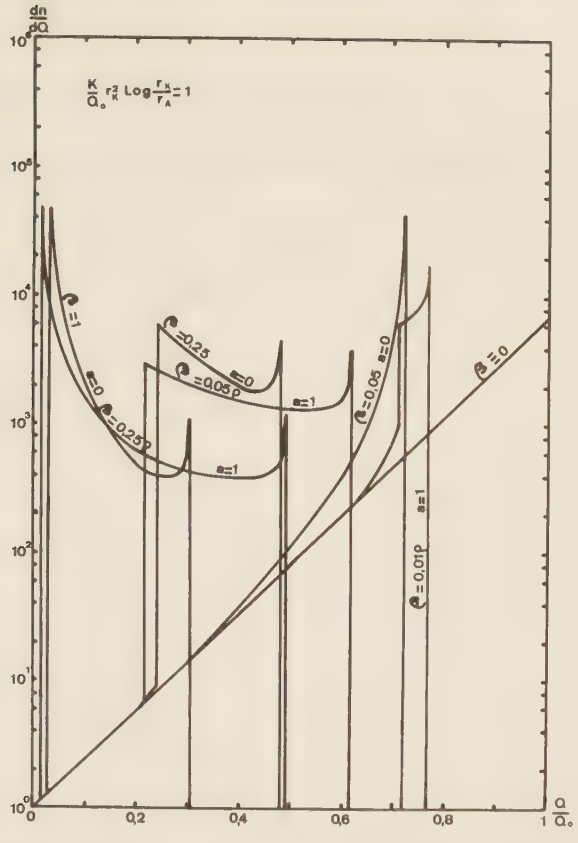


Figure 23 - Evolution du spectre d'amplitude en fonction de l'attachement α = 0, 1.

III.3 - RESULTATS EXPERIMENTAUX

III.3.1 - Chambre plane

III.3.1.1 - Collection des charges créées par les particules α de l'américium 241 (5,5 MeV)

La figure 12 montrait la charge collectée en fonction du champ électrique dans l'argon et le xénon liquides les plus purs que nous ayons obtenus.

Les charges maximales créées sont respectivement $3{,}3.10^{-14}$ C et $3{,}9.10^{-14}$ C dans l'argon et le xénon liquides. Il apparaît donc que la recombinaison en colonne est très importante, résultat en accord avec la forme du spectre d'amplitude montré en figure 24.

La largeur à mi-hauteur de la raie correspond sensiblement à la somme quadratique du bruit crête de l'électronique exprimé en quantité de charges ramenées à l'entrée de l'amplificateur et de la largeur théorique de la raie due au parcours des particules α (chaque contribution est égale à environ 5 % de la charge collectée soit, au total 7,5 %).

En accord avec les travaux antérieurs [39][40], la charge collectée en fonction du champ électrique suit une loi empirique de la forme :

$$Q \# Q_0(1-e^{-AE^n}) \qquad \text{avec} \quad A = 1{,}48.10^{-3}$$

et n = 0,54 pour l'argon liquide, A = $2{,}01.10^{-3}$ et n = 0,52 pour le xénon liquide (voir figure 25).

Figure 24 - Spectre d'amplitude typique en chambre d'ionisation plane (rayonnement α de 5,5 MeV, d = 1 mm, E = 50 kV/cm).

III.3.1.2 - Vitesse de déplacement des électrons dans l'argon et le xénon liquides

La mesure du temps de montée de l'impulsion de charges (temps de montée de l'amplificateur-60 ns-retranché quadratiquement, pas de mise en forme) permet de déduire le temps de transit des électrons et leur vitesse de déplacement $\overline{v_d}$ en fonction du champ électrique.

La figure 26 représente la variation de $\overline{v_d}$ en fonction du champ électrique dans l'argon et le xénon liquides.

Les vitesses de déplacement tendent vers une valeur de saturation de l'ordre de $8{,}5.10^5$ cm/s dans l'argon liquide et de $3{,}5.10^5$ cm/s dans le xénon liquide.

Ces résultats sont en accord avec les travaux antérieurs [10] ($\overline{v_d}_{sat}$ = 8.10^5 cm/s et 3.10^5 cm/s dans l'argon et le xénon liquides), les légères différences pouvant être attribuées à la présence d'impureté moléculaires (azote principalement).

III.3.2 - Chambre cylindrique

III.3.2.1 - Détection de rayons X ou γ

La figure 14 montrait la charge collectée en fonction du champ électrique

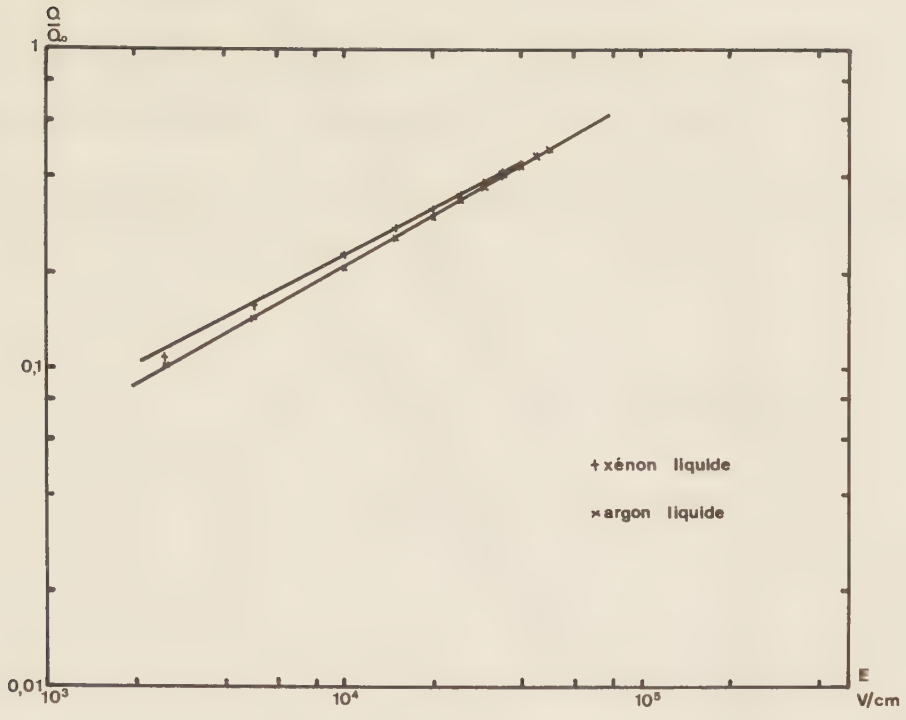


Figure 25 - Q/Q_o en fonction du champ électrique (coordonnées logarithmiques) dans l'argon et le xénon liquides en géométrie plane (^{241}Am-α de 5,5 MeV, d = 1 mm).

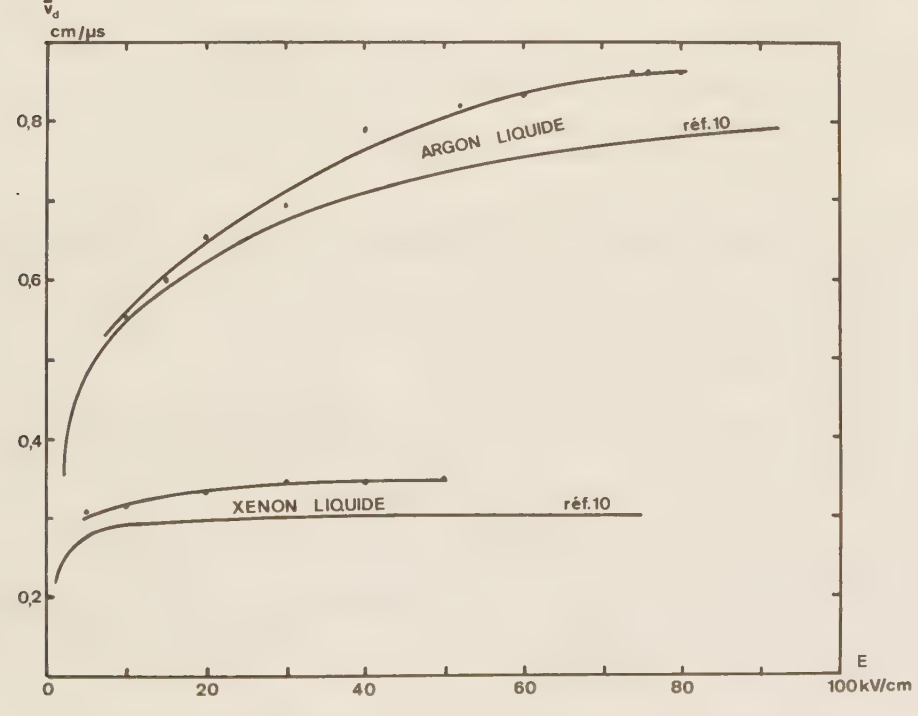


Figure 26 - Variation de $\bar{v}_d$ en fonction du champ électrique dans l'argon et le xénon liquides (rayonnement du ^{60}Co, $r_A = 0,1$ mm, $r_K = 8,5$ mm).

dans l'argon et le xénon liquides pour des photons du cobalt 60 (1,17 eV et 1,32 MeV) dont la moyenne est 1,25 MeV.

L'énergie de création de paire ion-électron étant de 26,4 eV et 22,5 eV [4][50] respectivement dans l'argon et le xénon liquides, l'effet photoélectrique correspond à une charge de, respectivement $7,6.10^{-15}$ C et $8,9.10^{-15}$ C tandis que la charge maximale due à l'effet Compton correspond à 1,04 MeV soit respectivement $6,3.10^{-15}$ C et $7,7.10^{-15}$ C.

La figure 27 montre un spectre typique obtenu dans l'argon liquide. Ce spectre est caractéristique d'un effet Compton quasi-uniforme de la charge nulle à la charge maximale.

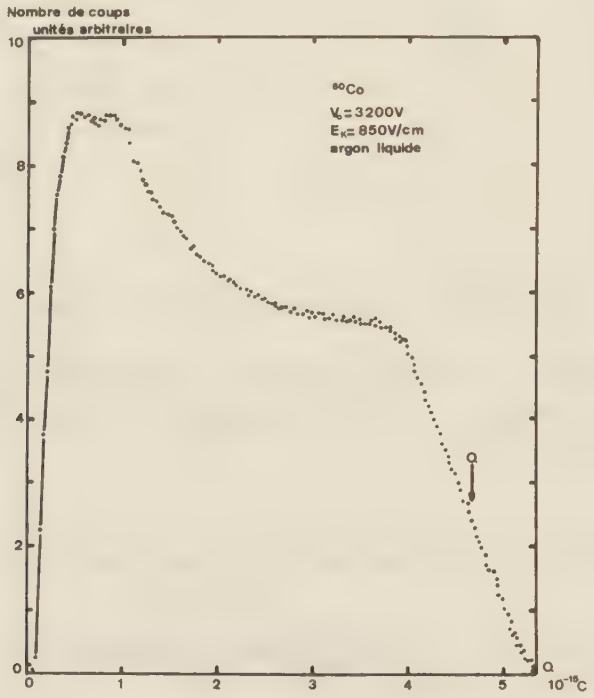


Figure 27 - Spectre typique d'amplitude en géométrie cylindrique dans l'argon liquide.

III.3.2.2 - Attachement

La figure 28 représente la variation du logarithme du rapport de la charge Q expérimentalement collectée à la charge maximale théorique créée Q_o en fonction du champ électrique dans l'argon et le xénon liquides.

La pente de ces courbes en coordonnées logarithmiques est égale au coefficient a, exposant défini en III.2.1.3.

Expérimentalement, a est égal à 0,55 dans l'argon liquide et a est égal à 0,59 dans le xénon liquide dans le domaine de champ électrique où l'attachement a été étudié (de 0,1 kV/cm à 1 kV/cm).

La correction résultant du passage de la solution approchée à la solution exacte modifie peu la valeur de a (figure 28).

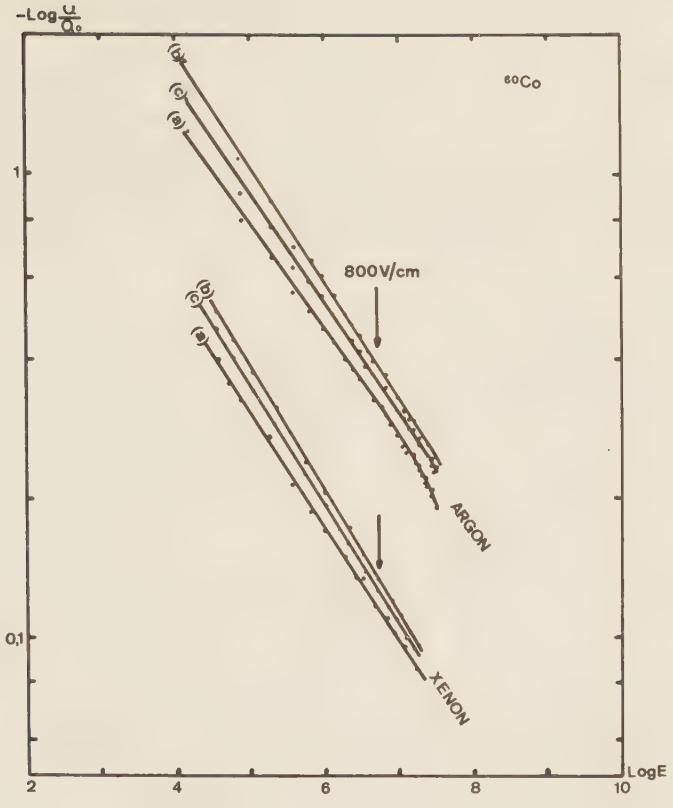


Figure 28 - Variation de Log Q/Q_o en fonction du champ électrique dans l'argon et le xénon liquides en chambre cylindrique (rayonnement du ^{60}Co, r_A = 0,1 mm, r_K = 8,5 mm).

a) valeurs expérimentales

b), c) valeurs corrigées (passage de la solution approchée à la solution exacte) pour a = 0, 1, respectivement.

S'il est admis que l'attachement électronique est dû principalement à l'oxygène (100 fois plus électronégatif que l'azote [49]), ces valeurs sont en accord avec l'approche de la saturation du paramètre β/P_o (attachement correspondant à une teneur de 1 ppm d'oxygène avec P_o, concentration en oxygène exprimée en ppm) quand le champ électrique diminue (entre 1 kV/cm et 70 kV/cm).

Cette saturation est conséquence du mécanisme d'attachement des électrons de faible énergie aux molécules d'oxygène.

Lorsqu'un électron s'attache à une molécule d'oxygène il y a formation d'un ion excité $(O_2^-)^*$ [51].

Cet ion instable possède en excédent, l'énergie de l'électron ε^* augmentée de l'énergie d'affinité A de l'oxygène pour les électrons. Lorsque $A + \varepsilon^* = \varepsilon_e$ est supérieure à l'énergie de dissociation de la molécule (4,5 eV), l'ion est stabilisé par dissociation :

$$(O_2^-)^* \rightarrow O^- + O$$

Lorsque l'énergie ε^* est plus faible (cas d'électrons dans les liquides nobles où l'énergie moyenne $\bar{\varepsilon}$ varie entre 0,01 eV et 1 eV), l'ion ne peut être stabilisé que

par collision avec des tierces particules X qui emportent l'énergie en excédent :

$$(O_2^-)^* + X \rightarrow O_2^- + X + \text{énergie cinétique.}$$

ε_e ne peut alors prendre que des valeurs discrètes correspondant aux états excités de (O_2^-).

La saturation de β/P_o (E), prévue par la théorie dans les gaz [51] est confirmée par les résultats expérimentaux dans les liquides [10][11][49][52] (figure 29).

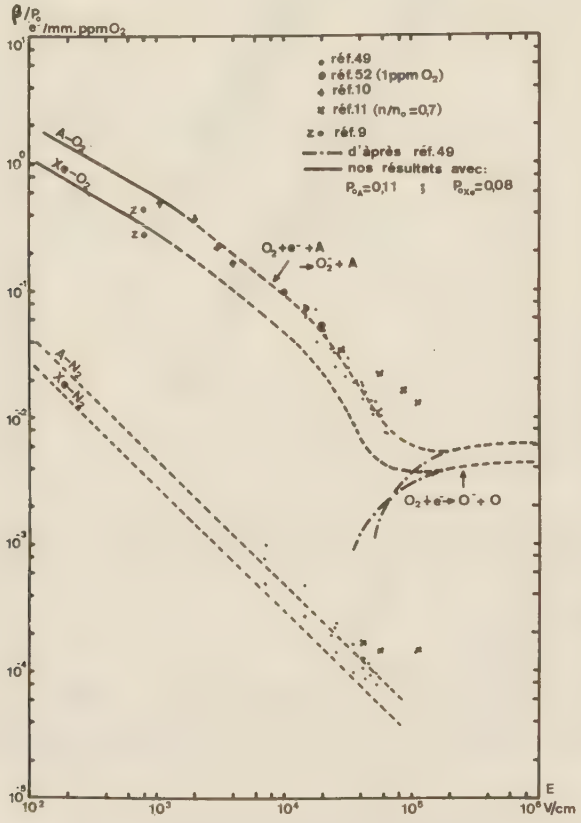


Figure 29 - Variation de β/P_o en fonction du champ électrique pour l'oxygène et l'azote dans l'argon et le xénon liquides (d'après les références [10] [11] et [49]). Les courbes relatives au xénon liquide sont déduites des courbes relatives à l'argon en considérant qu'à nombre de molécules d'impuretés et rapport champ sur densité égaux, l'attachement est le même.

A fort champ électrique, N.E. Bradbury [51] a montré que β/P_o doit varier en $\varepsilon^{-3/2}$ (avec $\bar{\varepsilon}$, énergie moyenne des électrons) donc sensiblement en $E^{3/2}$ car, dans cette région, $\bar{\varepsilon}$ est approximativement proportionnelle à E [23]. Les résultats de D.W. Swan [49] sont d'ailleurs en accord avec cette loi de variation.

Lorsque l'énergie des électrons est du même ordre que l'énergie de capture ε^*, la section efficace d'attachement et, par suite, β/P_o deviennent quasi-constants. Expérimentalement, cette énergie ε^* dans le liquide doit être inférieure à

ε^* dans le gaz (0,08 eV) pour expliquer la forte valeur de β/P_o et la valeur de a dans le domaine des faibles champs électriques (de l'ordre de 1 kV/cm). L'énergie moyenne des électrons est dans ce cas 10^{-2} eV à 5.10^{-2} eV donc inférieure à ε^*_{gaz} [23].

Il est cependant possible de concevoir un mécanisme plus efficace de dissipation de l'énergie en excédent suggéré par l'ordre à courte distance et à court terme dans l'argon liquide [49]. L'énergie en excédent serait dissipée par interaction avec les vibrations du pseudo-réseau constitué par les atomes voisins de gaz rare.

Alors que l'azote en phase gazeuse présente une affinité électronique faible, il semble que, dans un liquide, cette affinité ne soit pas négligeable, vraisemblablement à cause du mécanisme stabilisateur suggéré précédemment.

D'après les valeurs de Q/Q_o et la figure 29, il est possible de déduire les concentrations équivalentes d'oxygène dans l'argon et le xénon liquides soient respectivement 0,11 ppm et 0,078 ppm.

Par chromatographie, l'argon contient 2 ppm d'azote et le xénon 0,115 ppm d'azote, d'où, par différence des teneurs équivalentes en oxygène, 92 ppb d'oxygène dans l'argon liquide et 78 ppb dans le xénon liquide.

D'autre part, les résultats expérimentaux permettent d'expliquer l'écart entre la valeur de β/P_o déterminée par H. Zaklad [9] soit 0,266 électron ppm^{-1} mm^{-1} à 800 V/cm et celle donnée par d'autres auteurs [10][11][49][52]. En effet, les calculs montrent que l'exposant de l'exponentielle d'attachement est $\frac{\beta(r_K)\ r_K}{a+1}$.

Zaklad a pris a = 0 d'où $\beta(r_K) = \frac{1}{r_K} \text{Log}\ \frac{Q}{Q_o}$. L'expérience montre que a # 0,6 d'où $\beta(r_K) = \frac{1,6}{r_K} \text{Log}\ \left(\frac{Q}{Q_o}\right)$.

Avec a = 0,6, β/P_o = 0,43 électron ppm^{-1} mm^{-1} à 800 V/cm, valeur très voisine des déterminations antérieures.

III.4 - CONCLUSIONS

En raison de sa simplicité, la chambre d'ionisation est bien adaptée à la détection de particules d'énergie suffisante (supérieure à 500 keV) pour être détectées électroniquement lorsque les liquides sont suffisamment purs.

La géométrie et les dimensions de la chambre peuvent être facilement adaptées aux conditions particulières de détection (nature des particules, parcours, efficacité de détection, longueur de la trace des photoélectrons, possibilité de spectrométrie pour certains rayonnements.

Chapitre IV

FONCTIONNEMENT EN REGIME PROPORTIONNEL

IV.1 - L'AVALANCHE ELECTRONIQUE

IV.1.1 - Généralités

Lorsqu'un électron acquiert une énergie ε supérieure à l'énergie d'ionisation ε_i des atomes ou des molécules du milieu où il se meut, il y a une probabilité P_i non négligeable (d'autant plus grande que $\varepsilon - \varepsilon_i$ est grand [53]) d'ioniser un atome ou une molécule.

Ce processus est exponentiel, les électrons secondaires ainsi créés ayant la possibilité d'ioniser à leur tour après avoir été suffisamment accélérés par le champ électrique.

Dans les liquides, la notion de collision est plus floue (l'électron n'est jamais en espace libre) mais il est toujours possible de définir une énergie d'activation ε_a qui peut être différente de l'énergie d'ionisation ε_i (par exemple dans le cas de solides [54]) et qui correspond au seuil du phénomène d'ionisation secondaire.

IV.1.2 - Premier coefficient de Townsend

IV.1.2.1 - Définition

Si dn est le nombre d'électrons créés par élément de longueur dl lors de collisions avec les atomes ou les molécules, il vient :

$$dn = \alpha n dl$$

Le coefficient α est appelé premier coefficient de Townsend. Il dépend de la nature de l'atome ou de la molécule et surtout du champ électrique.

IV.1.2.2 - Influence des impuretés

L'influence de l'ionisation secondaire peut être masquée par l'attachement. Par exemple, si $\alpha < \beta$, alors :

$$dn = (\alpha-\beta)\, n dl \text{ est négatif.}$$

Il convient donc de purifier de façon très poussée les liquides utilisés.

IV.1.3 - Gain dû à l'avalanche électronique

IV.1.3.1 - Généralités

L'avalanche étant un processus exponentiel, elle n'est limitée donc exploitable que dans une configuration de champ électrique non uniforme, le meilleur cas étant la géométrie cylindrique avec anode au centre. L'avalanche sera donc limitée à une fraction du volume de détection. Le gain G sera donc le rapport de la charge collectée à la charge initialement créée.

IV.1.3.2 - Charge induite

Le relation fondamentale est :

$$dn = n\,(\alpha-\beta)\,dl.$$

Si E_o est le champ électrique au point où l'interaction nucléaire a eu lieu, E_A le champ électrique sur l'anode, ρ la distance du point d'interaction à l'anode, en intégrant, il vient :

$$n = n_o\, e^{\int_{E_o}^{E_A} (a-\beta)dl} \qquad \text{ou} \qquad \frac{n}{n_o} = G_o = e^{\int_{E_o}^{E_A} (\alpha-\beta)\,dl}$$

Lorsque l'avalanche est terminée, il y a autour de l'anode une densité d'ions positifs telle qu'elle maintient les électrons sur l'anode. Ces charges négatives ne pourront être évacuées que lorsque les ions s'éloigneront de l'anode.

La charge induite dQ sera, en l'absence d'attachement :

$$dQ = -\,Q_G \frac{dV}{V_o} \quad \text{avec} \quad dQ > 0, \quad Q_G = qn_o\, e^{\int_{E_o}^{E_A} (\alpha-\beta)\,dl}$$

et V_o différence de potentiel entre l'anode et la cathode, $q = 1{,}6.10^{-19}$ C.

Il vient :
$$dQ = -\,Q_G \frac{dr}{r\ \mathrm{Log}\ \frac{r_K}{r_A}}$$

Or, $dr = \bar{v}_{di}\,dt$ avec $\bar{v}_{di}$, vitesse de déplacement des ions positifs.

Par ailleurs $\bar{v}_{di} = K_i E$ (cas des ions lourds [29]) avec K_i mobilité des ions.

Par suite, en intégrant :

$$\frac{r^2 - r_A^2}{2} = \frac{K_i\, V_o\, t}{\mathrm{Log}\ \frac{r_K}{r_A}}$$

avec r, distance du nuage de charges positives à l'anode.

Il vient donc :

$$dQ = -Q_G \frac{K_i\, V_o\, dt}{r^2\ \mathrm{Log}^2\ \frac{r_K}{r_A}} = -\frac{Q_G}{2\ \mathrm{Log}\ \frac{r_K}{r_A}} \frac{dt}{t+t_A}$$

avec $$t_A = \frac{r_A^2\ \mathrm{Log}\ \frac{r_K}{r_A}}{2K_i\, V_o}$$

d'où $$Q = - \frac{Q_G}{2 \text{ Log } \frac{r_K}{r_A}} \text{ Log } \frac{t+t_A}{t_A}$$

$$= - Q_G \frac{\text{Log } \frac{r}{r_A}}{\text{Log } \frac{r_K}{r_A}}$$

La figure 30 montre un exemple concret de Q en fonction de t dans le xénon liquide avec $K_i = 3.10^{-4}$ cm^2/V.S (ou t_A = 362 ns) [55]. r_A = 3,75 µ, r_K = 8,5 mm, V_o = 5 000 V.

La charge maximale ne sera collectée qu'après un temps τ correspondant au temps de transit des ions (quelques dizaines de millisecondes).

En conclusion, la constante de temps de dérivation coupera les composantes lentes de Q(t) et la charge vue est inférieure à Q_G.

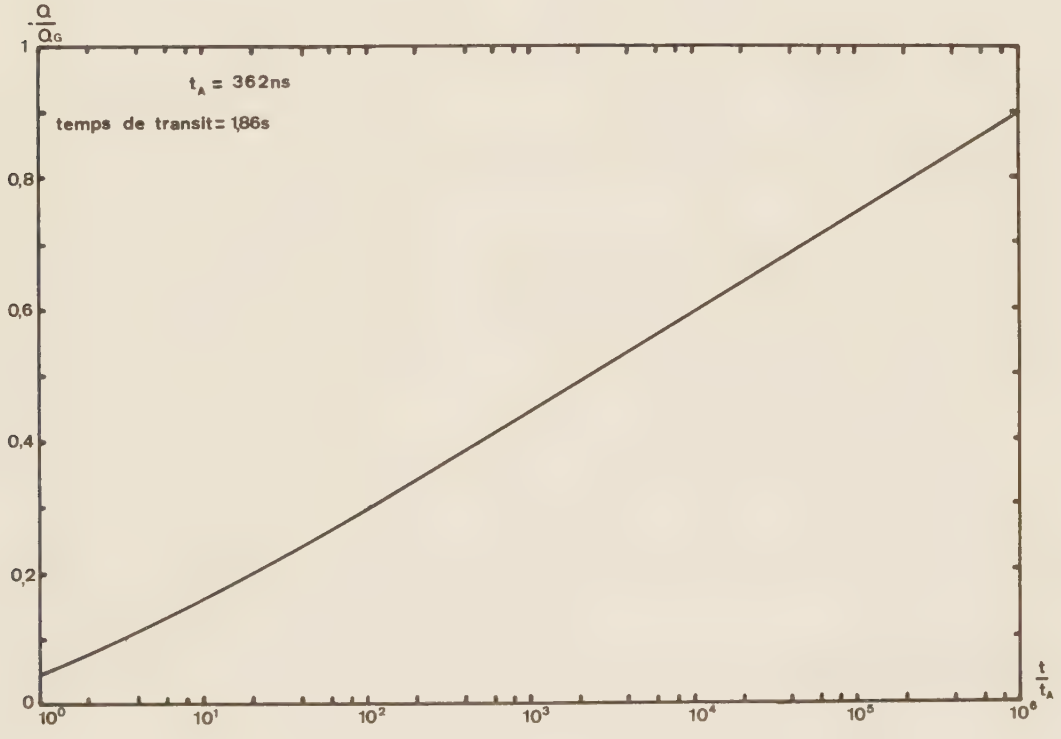


Figure 30 - Variation de Q/Q_G en fonction du temps après l'avalanche électronique dans le xénon liquide avec r_A = 3,75 µ, r_K = 8,5 mm et V_o = 5 000 V.

IV.1.3.3 - Cas particulier où $\alpha = \alpha_o$ = constante et $\beta = o$

Si le coefficient α est constant pour un champ électrique E supérieur à une valeur critique E_c, alors :

$$\text{Log } G_o = \text{Log } \frac{Q}{Q_o} = \text{Log } \frac{n}{n_o} = \alpha_o \, (r_c - r_A)$$

avec $$rc = \frac{V_o}{E_c \text{Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

Sous une autre forme, il vient :

$$\text{Log } G_o = \frac{\alpha_o}{E_c \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}} (V_o - V_A) \quad \text{avec} \quad V_A = r_A \, E_c \, \text{Log} \frac{r_K}{r_A}$$

Par conséquent, lorsque la courbe Log $G_o(V_o)$ tend vers une droite de pente a, ceci correspond à une saturation du coefficient α vers une valeur limite

$$\alpha_o = a \, E_c \, \text{Log} \frac{R_K}{r_A} = a \frac{V_A}{r_A}$$

IV.1.3.4 - Calcul général de α

La relation fondamentale est :

$$\text{Log } G_o = \int_{l_1}^{l_2} (\alpha - \beta) \, dl$$

avec l_1 et l_2, bornes du déplacement des électrons.

Or, $dr = - dl$,

donc : $$\text{Log } G_o = - \int_{\rho}^{r_A} (\alpha - \beta) \, dr$$

Mais : $$dr = - \frac{V_o \, dE}{E^2 \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

Finalement, il vient : $$\text{Log } G_o = \int_{E_o}^{E_A} (\alpha - \beta) \frac{V_o \, dE}{E^2 \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

Lorsque V_o varie de dV_o, le champ électrique E_o (pour $r = \rho$) et le champ électrique E_A (pour $r = r_A$) varient respectivement de :

$$dE_o = \frac{dV_o}{\rho \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}} \quad \text{et} \quad dE_A = \frac{dV_o}{r_A \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}}$$

Ainsi, pour une interaction ayant lieu à la même distance ρ, Log G_o sera :

$$\text{Log } G_o = \int_{E_o + dE_o}^{E_A + dE_A} (\alpha - \beta) \frac{(V_o + dV_o)}{E^2 \text{ Log} \frac{r_K}{r_A}} dE$$

$$\text{Log } G_o = -(\alpha_{E_o} - \beta_{E_o}) \frac{(V_o + dV_o)}{E_o^2 \text{ Log } \frac{r_K}{r_A}} dE_o + \text{Log } G_o \left(1 + \frac{dV_o}{V_o}\right)$$

$$+ (\alpha_{E_A} - \beta_{E_A}) \frac{(V_o + dV_o)}{E_A^2 \text{ Log } \frac{r_K}{r_A}} dE_A$$

Il vient :

$$\frac{d(\text{Log } G_o)}{dV_o} = -\rho(\alpha_{E_o} - \beta_{E_o}) \frac{(V_o + dV_o)}{V_o^2} + \frac{\text{Log } G_o}{V_o} + r_A(\alpha_{E_A} - \beta_{E_A}) \frac{(V_o + dV_o)}{V_o^2}$$

Lorsque $dV_o \to o$, $\frac{d(\text{Log } G_o)}{dV_o} \to \frac{\partial(\text{Log } G_o)}{\partial V_o}$

d'où : $$\frac{\partial(\text{Log } G_o)}{\partial V_o} = \frac{1}{V_o} \left[\rho(\beta_{E_o} - \alpha_{E_o}) + r_A(\alpha_{E_A} - \beta_{E_A})\right] + \frac{\text{Log } G_o}{V_o}$$

En admettant que $\beta_{E_o} >> \alpha_{E_o}$ et $\beta_{E_A} << \alpha_{E_A}$, il vient :

$$V_o \frac{\partial(\text{Log } G_o)}{\partial V_o} - \text{Log } G_o = \alpha_{E_A} r_A + \beta_{E_\rho} \rho$$

Le nombre d'interactions le plus élevé correspond à des interactions près de la cathode ; il convient donc de prendre $\rho = r_K$. D'où la relation finale :

$$V_o \frac{\partial(\text{Log } G_o)}{\partial V_o} - \text{Log } G_o = \alpha_{E_A} r_A + \beta_{E_K} r_K.$$

Pour les faibles valeurs de V_o, l'attachement est prédominant et le second membre vaut $\beta_{E_K} r_K$. Par contre pour les fortes valeurs de V_o, l'ionisation secondaire est importante et le second membre vaut $\alpha_{E_A} r_A$.

Remarque : Ce calcul est aussi applicable à l'exploitation des courbes d'attachement obtenues en chambre d'ionisation cylindrique (paragraphes III.2.1.3 et III.3.2.2).

IV.1.3.5 - Spectre d'amplitude ou d'énergie

Le spectre d'amplitude est une raie lorsque l'énergie perdue dans la chambre est constante (effet photoélectrique, particules α). La largeur de la raie est fonction des fluctuations statistiques du nombre de charges primaires créées. Cette création étant un phénomène quasi-poissonien, la variance du nombre N d'électrons créés est égale à N, soit un écart-type de $\sqrt{N}$.

La largeur de la raie à mi-hauteur sera donc 2,36 fois l'écart type affectée

d'un facteur multiplicatif f inférieur à l'unité. Ce facteur tient compte du fait que l'avalanche électronique n'est pas un processus poissonien, les créations de deux électrons secondaires n'étant pas des phénomènes indépendants.

Le facteur f est dans la plupart des cas compris entre 0,6 et 0,8 [56].

Dans le cas où l'effet Compton n'est pas négligeable, la raie est associée à un spectre quasi-uniforme de l'amplitude nulle à l'amplitude correspondant à l'énergie maximale des électrons Compton.

IV.1.4 - Phénomènes parasites

Les électrons accélérés par le champ électrique transfèrent une fraction de leur énergie aux atomes du liquide. Selon la quantité d'énergie acquise, l'atome peut être ionisé ou seulement excité. Les atomes excités peuvent revenir à l'état fondamental soit après un temps très court (de l'ordre de 10^{-8} s à 10^{-7} s pour les niveaux de résonance) soit après une période relativement longue (de l'ordre de 10^{-4} s à 10^{-3} s pour les niveaux métastables) [57].

Lors de ces désexcitations, l'atome excité émet, un quantum électromagnétique, d'énergie $h\nu$ (h, constante de Planck, ν, fréquence d'oscillation) égale à l'énergie d'excitation.

IV.1.4.1 - Phénomènes dus aux ions

Lorsque les ions, attirés par la cathode se trouvent à une distance de l'ordre de 5.10^{-8} cm de celle-ci, ils sont neutralisés. L'extraction de l'électron emprunte à l'ion (dont l'énergie potentielle est ε_i) une quantité d'énergie comprise entre ϕ et $\phi + \Psi$, ϕ étant le travail d'extraction d'un électron du métal et Ψ la largeur de la bande de conduction du métal, d'où une première condition :

$$\varepsilon_i > \phi$$

L'atome ou la molécule neutralisé possède en excédent une énergie $\Delta\varepsilon$ comprise entre $\varepsilon_i - (\phi+\Psi)$ et $\varepsilon_i - \phi$.

Cette énergie peut servir soit à dissocier la molécule si $\Delta\varepsilon$ est supérieure à l'énergie de dissociation D (D est d'autant plus faible que la molécule est complexe), soit, lorsque l'atome ou la molécule s'est approché à environ 10^{-8} cm, à extraire un deuxième électron qui sera libre. Ce dernier effet ne sera possible que si $\Delta\varepsilon>\phi$, l'énergie en excédent étant emportée par l'électron sous forme d'énergie cinétique

La condition finale d'émission d'un électron libre est donc :

$$\varepsilon_i > 2\phi.$$

A titre d'exemple, le tableau suivant donne les travaux d'extraction et les probabilités d'extraction γ_i pour différents ions sur divers métaux [57].

Les faibles valeurs de γ_i sont dues aux fortes probabilités de dissociation des molécules complexes.

Il est à noter que la présence d'un champ électrique sur la cathode contribue à abaisser le potentiel d'extraction d'une valeur $\Delta\phi_{eV} = 3{,}79.10^{-4}\sqrt{E_{V/cm}}$ et donc à augmenter γ_i [57].

Métal	ϕ_{eV}	Ion	γ_i
Platine	5,3	A^+	$1,1.10^{-2}$
Tungstène	4,5	A^+	9.10^{-3}
		K_r^+	4.10^{-3}
		X_e^+	$1,5.10^{-3}$
Nickel	4,9	A^+	$1,5.10^{-2}$
		CH_4^+	3.10^{-10}
		CO_2^+	5.10^{-10}
		$C_2H_5OH^+$	$7,6.10^{-11}$
Magnésium	3,6	A^+	10^{-1}

IV.1.4.2 - Phénomènes dus aux atomes excités

De façon semblable au mécanisme d'extraction d'un électron de la cathode par les ions, les photons émis par les atomes excités peuvent arracher des électrons de la cathode par effet photoélectrique avec une probabilité γ_p d'autant plus grande que l'énergie $h\nu$ des photons est supérieure à ϕ.

Le tableau suivant donne quelques exemples de γ_p pour différentes valeurs de $h\nu$ et divers métaux [57] :

Métal	ϕ_{eV}	$h\nu_{eV}$	γ_p
Baryum	2,5	4	10^{-4}
		6	$2,6.10^{-4}$
Nickel	4,9	10	10^{-2}
		20	0,14
Cadmium	3,7	10	3.10^{-3}
		20	6.10^{-2}
Molybdène	4,3	10	2.10^{-3}
		20	4.10^{-2}

IV.1.4.3 - Influence de couches atomiques ou moléculaires adsorbées

En général, l'adsorption d'hydrogène, d'oxygène ou d'azote augmente le potentiel d'extraction et réduit γ_i et γ_p. Toutefois, l'adsorption d'oxygène sur le césium et l'argent diminue ϕ. Le tableau suivant en donne quelques exemples : [57]

Surface	ϕ_{eV}	γ_i	γ_p
$Pt + H_2$	-	$1,1.10^{-2}$ (A^+)	0,1
$Pt + O_2$	-	8.10^{-3} (A^+)	-
$Pt + N_2$	-	5.10^{-3} (A^+)	-
Cu	4,5	-	-
CuO	5,3	-	-
CuO_2	5,2	-	-
Cs	1,95	-	-
CsO	0,71	-	0,15

IV.1.4.4 - Influence du milieu de détection

Les électrons sont extraits du métal de la cathode avec une certaine énergie cinétique. Ils sont injectés dans le milieu de détection et entrent en interaction avec les atomes ou molécules du milieu.

Dans le cas d'un gaz, certains électrons entrent en collision avec les atomes et sont réfléchis vers la cathode.

J.K. Theobald a montré que, dans les gaz, à partir d'une pression de 100 torrs, le rapport K_m du courant photoinjecté dans le gaz au courant photoélectrique dans le vide ne dépend que du quotient champ électrique sur pression et que de l'énergie des électrons [58]. D'après ses résultats, le coefficient K_m diminue quand l'énergie moyenne des électrons injectés augmente.

Des expériences d'injection d'électrons énergétiques dans l'argon liquide [59] montrent que cet effet de "rétrodiffusion" est bien plus important, en raison de la densité du milieu. La figure 31, résume les résultats de ces expériences.

IV.1.4.5 - Bilan - deuxième coefficient de Townsend

Une avalanche contenant N électrons produit N ions et $K_p N$ photons (K_p diminuant quand le champ électrique augmente [37]).

Dans le vide, le nombre d'électrons extraits de la cathode serait :

$$N_e = \gamma_i N + \gamma_p K_p N = (\gamma_i + \gamma_p K_p) N.$$

Dans le milieu de détection, le nombre d'électrons injectés sera :

$$N'_e = K_m N_e = (\gamma_i + \gamma_p K_p) K_n N = \gamma N$$

Le rapport $\gamma = \frac{N'_e}{N}$ est appelé deuxième coefficient de Townsend.

IV.1.4.6 - Influence sur le gain d'avalanche électronique

Les N électrons sont multipliés avec un gain M. Le nombre d'électrons

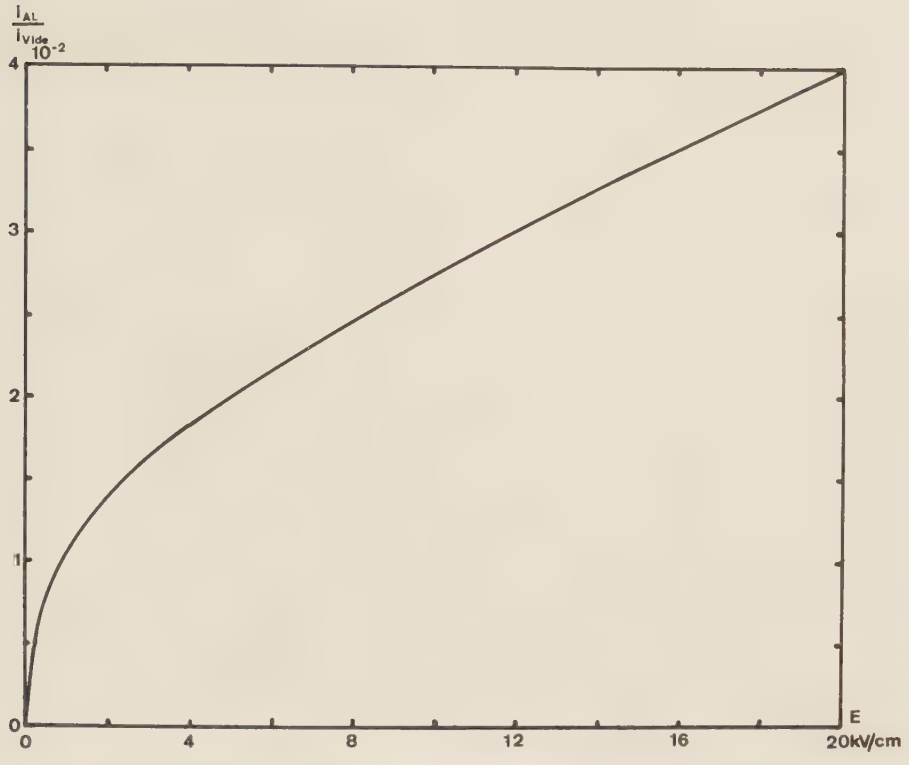


Figure 31 - Variation du rapport du courant injecté dans l'argon liquide au courant émis dans le vide en fonction du champ électrique dans l'argon liquide (d'après la référence [58]).

extraits de la cathode est γMN. Ces électrons, à leur tour, créent une avalanche contenant $\gamma M^2 N$ électrons. Le cycle recommence en créant une troisième avalanche contenant $\gamma^2 M^3 N$ électrons.

Le nombre total d'électrons créés sera :

$$N_T = MN + \gamma M^2 N + \gamma^2 M^3 N + \ldots$$

$$= MN\ (1+\gamma M+\gamma^2 M^2 + \ldots)$$

$$= \frac{MN}{1 - \gamma M} \qquad \text{si} \quad \gamma M < 1$$

Le gain G sera donc : $G = \frac{M}{1 - \gamma M}$

Lorsque le produit γM est supérieur à l'unité, la série diverge. La signification physique est le claquage ou la décharge entretenue. Cette décharge est limitée physiquement par la charge d'espace qui réduit le champ électrique au niveau de l'anode.

Dans le cas d'une avalanche avec effet parasite dû aux photons, les différents paquets d'électrons ne sont séparés en temps que par le temps de transit T_e des électrons (de l'ordre de 500 ns à 2 µs). L'influence des constantes de temps de mise en forme (1 à 10 µs) de la chaîne électronique sera réduite et l'impulsion

recueillie correspondra au gain G avec toutefois un léger allongement.

Dans le cas d'un effet ionique, le temps de transit (ion + électron) est beaucoup plus long (de l'ordre de 200 µs à 100 ms) et les impulsions dues aux différents nuages d'ions sont clairement séparées [60]. Cet effet perturbera donc grandement l'analyse en amplitude des signaux recueillis.

IV.2 - L'AVALANCHE ELECTRONIQUE DANS LES LIQUIDES

IV.2.1 - Conditions expérimentales

Dans l'argon ou le xénon gazeux, le coefficient α est égal à l'unité pour une valeur de E égale à environ 2 kV/cm à la pression atmosphérique. Dans les liquides, ceci conduit à des champs de l'ordre de 10^6 V/cm.

Nous avons donc choisi comme cathodes des cylindres de diamètre 10 mm à 20 mm et comme anodes des fils de diamètre 7 µ à 8 µ.

La cathode est en acier inoxydable, la couche d'oxyde de chrome ayant un travail d'extraction relativement élevé.

Les premiers fils d'anode utilisés furent d'abord des fils de tungstène doré de diamètre 7 µ. Après examen de l'état de surface (voir figure 32a) dont la qualité conditionne l'homogénéité du champ électrique et par suite l'amplification due à l'avalanche, nous avons choisi des fils d'acier inoxydable de diamètre 7,5 µ à surface de haute qualité (voir figure 32b).

IV.2.2 - Argon liquide

En géométrie cylindrique (diamètre de la cathode : 17 mm, diamètre de l'anode : 7,5 µ, rayonnements γ utilisés : ^{60}Co - 1,17 MeV et 1,33 MeV et ^{137}Cs-661 keV) la chambre fonctionne en collection directe de charges (chambre d'ionisation à "impulsions") jusqu'à ce que le champ électrique sur l'anode atteigne environ 1,5 MV/cm. Les spectres d'énergie et amplitudes des impulsions de charge correspondent à une collection des charges avec un attachement en rapport avec la valeur du champ électrique sur la cathode (650 V/cm).

Dans ce domaine de champ électrique, il n'y a donc pas de fonctionnement en régime proportionnel.

Lorsque le champ électrique sur l'anode est supérieur à 1,5 MV/cm environ, une décharge auto-entretenue s'instaure (impulsions très nombreuses, de forte amplitude, de l'ordre de 10^{-12} C, sans rapport avec l'énergie et l'activité de la source).

Cette décharge ne cesse que lorsque le champ électrique sur l'anode est ramené à des valeurs de l'ordre de 1 MV/cm.

Ce fonctionnement peut être interprété par l'existence de phénomènes parasites sur la cathode.

Les ions de l'argon ont une énergie potentielle égale à 15,7 eV et les photons de désexcitation une énergie de l'ordre de 12 eV à 14 eV. Lorsqu'ils frappent la cathode, ces ions et ces photons ont de grandes chances d'extraire des électrons.

Ces électrons sont ensuite accélérés par le champ électrique et transfèrent

Figure 32 a - Vues à fort grossissement d'un fil de tungstène doré de diamètre 7 µ.

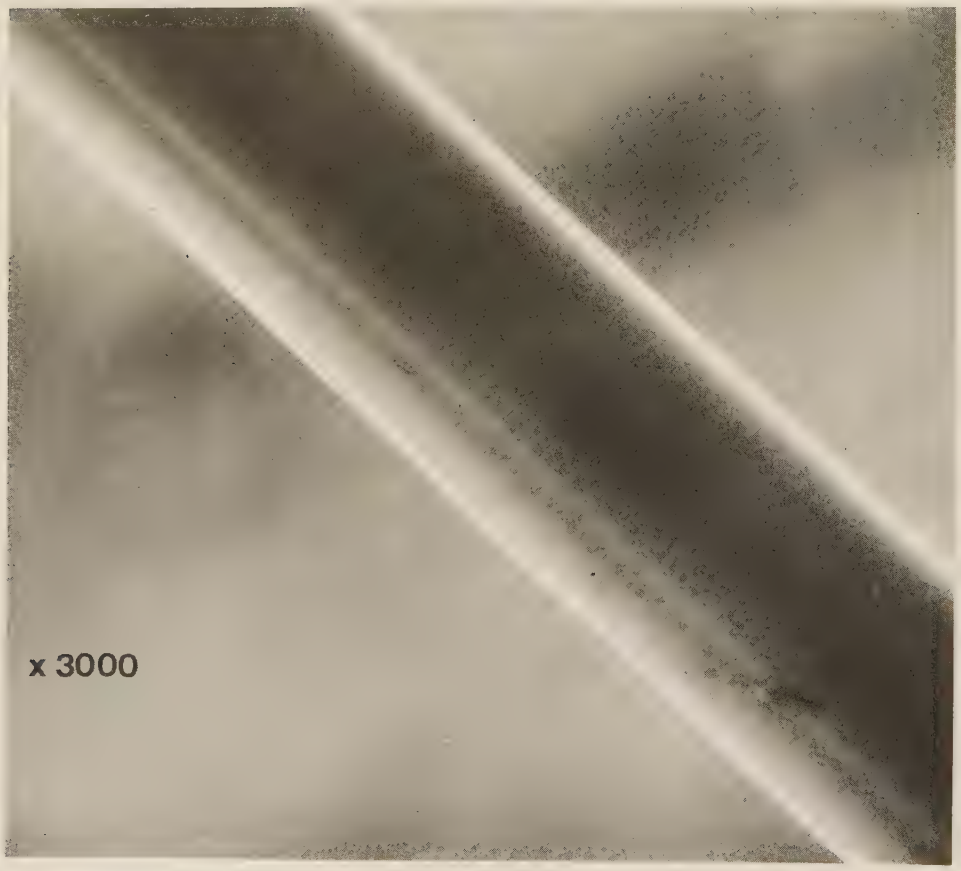


Figure 32 b - Vues à fort grossissement d'un fil d'acier inoxydable de diamètre 7,5 µ.

une quantité appréciable d'énergie aux atomes qui sont excités. Le retour à l'état fondamental de ces atomes génère des photons qui vont agir à leur tour sur la cathode.

Cependant, à cause de la densité du liquide et de la forte énergie d'ionisation de l'argon, il y a peu d'ionisations secondaires du type Townsend donc il n'y a pas fonctionnement en régime proportionnel.

En conclusion, il semble que cette décharge soit due aux photons de désexcitation des atomes d'argon et soit déclenchée par les électrons primaires provenant de la détection des rayonnements γ du cobalt ou du césium.

Cette décharge ne cessera que lorsque le champ électrique sur la cathode sera tel que l'effet de présence du liquide (traduit par la valeur du coefficient K_m) devient prépondérant dans l'extraction des électrons et brise la chaîne d'autoentretien.

IV.2.3 - Xénon liquide

Contrairement à l'argon liquide, le xénon liquide s'est révélé expérimentalement un diélectrique au sein duquel des avalanches du type Townsend peuvent se déclencher. Cela peut être interpréter grâce à une valeur plus faible de l'énergie d'activation ε_a, que dans le cas de l'argon. Cette énergie est probablement comprise entre la largeur de bande interdite du xénon solide (9,3 eV) [61] et l'énergie d'ionisation de l'atome de xénon (12,1 eV).

IV.2.3.1 - Spectres d'énergie

Un spectre typique d'amplitude donc d'énergie obtenu dans une chambre de 10 mm de diamètre (anode de 7,5 μ de diamètre en acier inoxydable) avec du césium 137 (γ-661 keV) et pour une tension appliquée de 3 500 V est représenté en figure 33. Le gain est d'environ 2.

La résolution en énergie (rapport de la largeur à mi-hauteur de la raie à l'aiplitude moyenne de la raie) est d'environ 35 %. Cette valeur est forte comparée à la résolution théorique (bruit de l'électronique plus fluctuation du nombre de paires créées) soit environ 10 % (rayonnement utilisé : ^{137}Cs, gain : 3).

IV.2.3.2 - Purification "électrolytique"

En interprétant la dégradation de la résolution par une augmentation de la fluctuation (due à un effet d'attachement) du nombre de charges primaires arrivant dans la zone d'avalanche, nous avons donc cherché à améliorer la purification des liquides.

Nous avons adopté la méthode suivante utilisée antérieurement par plusieurs auteurs [62][63].

Lorsque le fil d'anode est porté à un potentiel négatif, il émet des électrons (émission froide due au champ électrique). Ceux-ci s'attachent aux molécules électronégatives et forment des ions négatifs qui vont s'incruster dans l'électrode cylindrique devenue anode. L'expérience montre qu'ils y restent incrustés pendant une dizaine d'heures.

Au cours de cette purification, le courant d'émission augmente d'un ordre

de grandeur environ avant de se stabiliser. Celui-ci n'est plus limité que par la valeur de la tension minimale nécessaire à l'émission et que par la résistance de forte valeur (10^9 Ω) en série avec l'alimentation. La purification est alors considérée comme achevée.

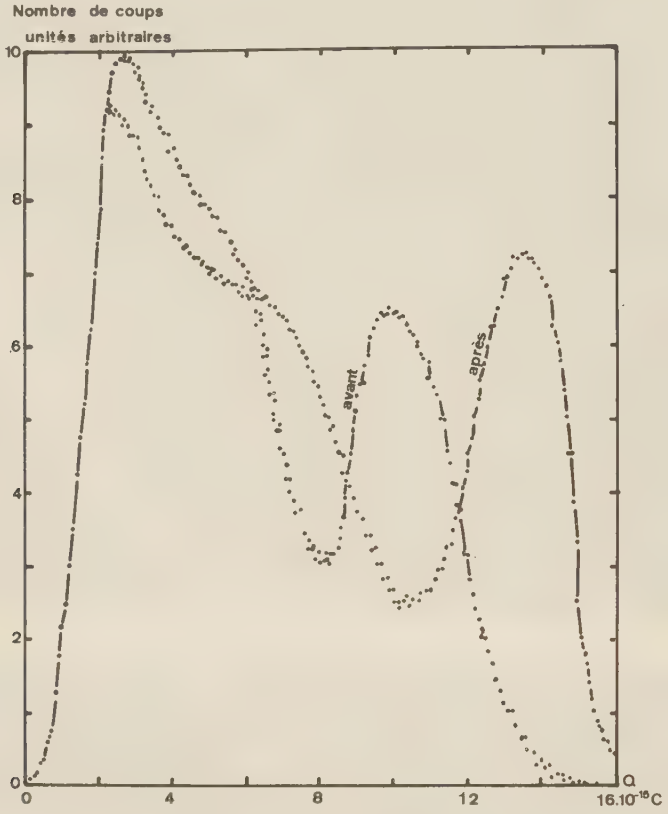


Figure 33 - Spectre d'amplitude typique, en régime proportionnel dans le xénon liquide (diamètre de la cathode : 10 mm, diamètre de l'anode : 7,5 μ, source de ^{137}Cs, tension : 3 500 V, gain : 3) avant et après purification "électrolytique".

Les figures 33 et 34 montrent l'amélioration obtenue quant au gain et à la résolution pour une tension appliquée donnée.

IV.2.3.3 - Gain d'avalanche

Les courbes de la figure 35 montrent les résultats obtenus avec le cobalt 57 (122 keV et 133 keV) et le césium 137 (661 keV) dans une chambre dont la cathode et l'anode ont pour diamètres 10 mm ou 17 mm et 7,5 μ respectivement. Les quantités de charges primaires créées sont respectivement 9.10^{-16} et $4{,}7.10^{-15}$ C.

Au-dessus de 4 200 V pour la chambre de 10 mm et de 4 800 V pour la chambre de 17 mm, il y a claquage.

Les valeurs du gain d'avalanche et de la résolution juste avant le claquage sont de 10 et 40 % pour la chambre de 10 mm de diamètre, 30 et 45 % pour la chambre

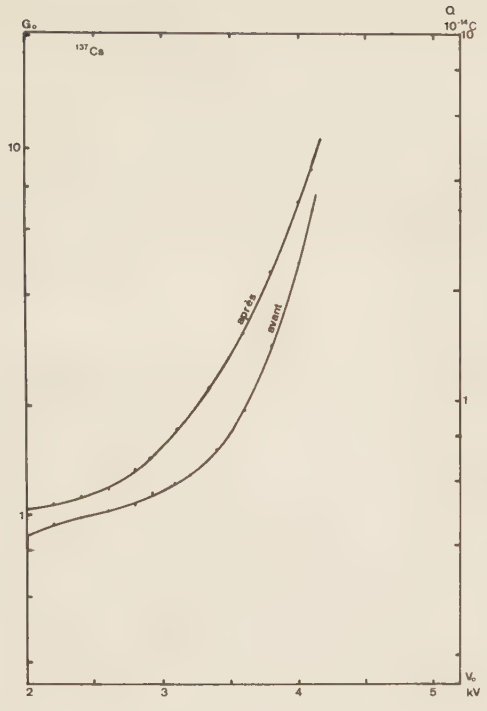


Figure 34 - Gain d'avalanche (chambre de 10 mm de diamètre - source de ^{137}Cs) dans le xénon liquide avant et après purification "électrolytique".

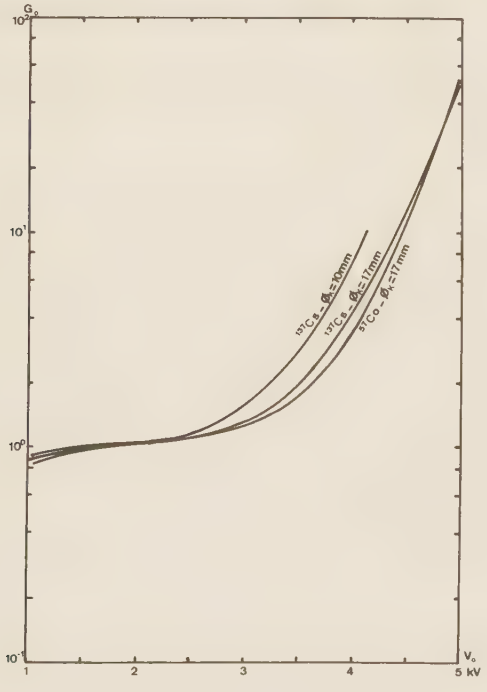


Figure 35 - Gain d'avalanche dans le xénon liquide (^{67}Co et ^{137}Cs, chambre de 10 mm et 17 mm).

de 17 mm (rayonnement γ du césium 137).

Les courbes de gain sont exploitées comme en IV.1.3.3. La figure 36 résume les résultats et montre la variation du coefficient α et du coefficient β en fonction du champ électrique.

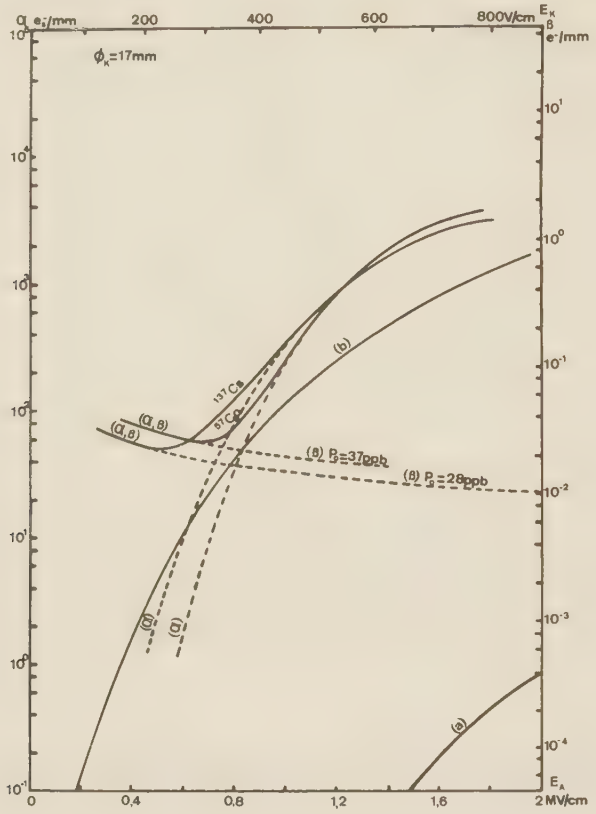


Figure 36 - Variation des coefficients α et β en fonction du champ électrique dans l'argon liquide.

La valeur maximale de α déduite de ces expériences est de 3.10^4 électrons créés par millimètre de parcours. Le champ électrique sur l'anode est alors environ 1,8 MV/cm. Cette valeur, en accord avec les travaux du groupe de Berkeley [64] est cependant très inférieure à la valeur maximale qu'il serait théoriquement possible d'atteindre en supposant qu'il n'existe aucun effet parasite et que l'effet de la charge d'espace est négligeable. Cette valeur maximale théorique est l'inverse de la distance moyenne entre deux atomes de xénon, soit $2,75.10^6$ électrons par millimètre. Il est intéressant de comparer les résultats obtenus expérimentalement avec ceux qu'il est possible de déduire des mesures en phase gazeuse.

D'après les résultats de Von Engel [57], en considérant le xénon liquide comme un gaz comprimé à 4.10^5 torrs, (les densités sont alors équivalentes si le gaz est parfait) nous obtenons, pour une même valeur du champ électrique, une valeur de α très inférieure à celle déduite des expériences faites dans le liquide (courbe a). Cette différence peut être interprétée en termes d'énergie d'activation inférieure à l'énergie d'ionisation de l'atome ou en termes d'écart avec la loi

des gaz parfaits, la valeur de la pression équivalente étant alors erronnée. Cette dernière hypothèse serait aussi à retenir, le xénon s'éloignant très rapidement du gaz parfait pour des pressions supérieures à 30 bars [65].

D'après les courbes de compressibilité [65], la pression équivalente de 4.10^5 torrs correspond, en considérant le gaz comme parfait et en négligeant les effets dus à l'approche du point critique (quand la température dépasse la température critique soit 14°C), à une pression de 5.10^4 torrs (66 bars). La courbe b correspondant à ce résultat est alors très voisine des valeurs expérimentales.

IV.2.3.4 - Claquage

Dans une chambre de diamètre 10 mm, il y a claquage lorsque la tension devient supérieure à 4 200 V (gain 10) alors que le claquage apparaît pour une tension supérieure à 4 800 V dans une chambre de 17 mm de diamètre (gain 35).

D'après le paragraphe IV.1.4.6, ceci peut être interprété par une variation du produit γM et plus particulièrement du coefficient K_m (paragraphe IV.1.4.4).

En effet, dans l'argon liquide, ce coefficient dépend fortement de la valeur du champ électrique E_K à la surface de la cathode [59] (figure 31) quand celui-ci est de l'ordre de 1 kV/cm. Dans la chambre de 10 mm de diamètre (fil de 7,5 µ) E_K vaut 1,14 kV/cm et dans la chambre de 17 mm, E_K = 760 V/cm. A ces valeurs du champ électrique correspondent des valeurs de K_m égales à $1,5.10^{-2}$ et $1,25.10^{-2}$ respectivement. Nous supposerons que K_m est le même dans l'argon et le xénon liquides pour une même valeur du rapport champ électrique sur densité, soit respectivement $1,25.10^{-2}$ et 10^{-2}.

En supposant constant le nombre K_p de photons émis par électron secondaire, le rapport des gains d'avalanche avant le claquage doit être égal à l'inverse du rapport des valeurs de K_m. En réalité, K_p diminue quand le champ électrique sur l'anode augmente, ce qui est le cas lors du passage de la chambre de 10 mm de diamètre à celle de 17 mm de diamètre. Le produit γM sera donc dans ce cas égal à l'unité pour une tension correspondant à un gain M plus grand que celui calculé à partir de la variation K_m.

En effet, d'après la figure 31 et à partir des résultats obtenus en chambre de 10 mm, la valeur du gain pour laquelle le claquage devrait se produire en chambre de 17 mm est de 12,5 correspondant à une tension de 4 500 V. Cependant, expérimentalement, le claquage se produit pour des gains de l'ordre de 35, la tension étant alors de 4 800 V. Il semble donc que le claquage et la décharge soient bien dus à l'action des photons sur la cathode. Il est d'ailleurs possible de donner une estimation de γ dans le xénon liquide. Les expériences dans le vide ont montré que pour chaque photon de 8 eV et de 10 eV frappant une surface de fer, 3.10^{-2} et 4.10^{-2} électron par photon incident sont émis [57]. Chaque avalanche produit environ 3.10^5 ions (avec le césium 137 et un gain de 10). En phase gazeuse K_p est de l'ordre de 50 [57] donc chaque avalanche produit environ $1,5.10^7$ photons qui extraient de la cathode $5,3.10^5$ électrons.

L'influence de la présence du liquide réduit ce nombre de deux ordres de grandeur [59] soit $5,3.10^3$ électrons. Par suite γ, le coefficient d'émission secondaire, est de l'ordre de $1,8.10^{-2}$ électron par électron secondaire. Ce résultat conduit à des valeurs de gain pour lesquelles le claquage apparaît de l'ordre de

55 alors que l'expérience montre que ce phénomène apparaît pour des gains de l'ordre de 10 (chambre de 10 mm) ou de 35 (chambre de 17 mm). Le calcul donne donc un bon ordre de grandeur de la valeur du gain au claquage.

IV.2.3.5 - Exploitation des courbes de gain

IV.2.3.5.1 - Attachement

A partir des courbes de gain d'avalanche, les coefficients α et β sont calculés d'après la formule

$$\alpha_{E_A} r_A + \beta_{E_K} r_K = V_o \left[\frac{\partial(\text{Log } G)}{\partial V} \right]_o - \text{Log } G_o$$

(paragraphe IV.1.3.3).

La figure 36 montre d'ailleurs l'importance de chaque terme du premier membre soit à faible champ électrique ($\beta_{E_K} r_K$), soit à fort champ électrique ($\alpha_{E_A} r_A$). Il est intéressant d'essayer de séparer les contributions de ces deux termes.

D'après les résultats des expériences en chambre d'ionisation cylindrique (paragraphe III.3.2.2), l'attachement dans le xénon liquide est, en moyenne de la forme $\beta/P_o = A/E^{0,59}$. La constante A doit être sensiblement la même que dans l'argon liquide avec cependant un facteur de correction dû aux différences de densités atomiques dans l'argon et le xénon liquides. Pour un même nombre de molécules d'oxygène, les concentrations respectives seront dans le rapport inverse des densités atomiques. A faible champ électrique, α est quasi-nul et l'expression $\beta_{E_K} r_K + \alpha_{E_A} r_A$ est égale à $\beta_{E_K} r_K$.

Une courbe de la forme $A'/E^{0,59}$ peut être tracée (courbe β) en prenant A $A' = 0,028$ A ce qui correspond à $P_o = 28$ ppb.

Cette concentration équivalente en oxygène est inférieure à celle obtenue soit par chromatographie, soit par mesure électrique dans une chambre cylindrique fonctionnant en collection directe.

Cette différence montre l'amélioration de la pureté due à la purification "électrolytique".

IV.2.3.5.2 - Coefficient α

La contribution de $\beta_{E_K} r_K$ étant ainsi estimée, il devient possible d'estimer celle due à $\alpha_{E_A} r_A$ et de réduire la courbe α_{E_A} (E_A) (courbe α de la figure 36).

Ces résultats montrent qu'une ionisation secondaire appréciable existe dès que les électrons sont soumis à un champ de 0,8 MV/cm. Ceci correspond à un rayon de 8,5 μ lorsque la tension appliquée est de 5 000 V. La zone d'avalanche est donc très étroite autour de l'anode, environ 2 à 2,5 fois le diamètre du fil. La courbe α (E) montre que la coefficient α varie d'abord exponentiellement avec le champ électrique (E inférieur à 1 MV/cm environ) puis de façon linéaire quand le champ électrique est supérieur à 1 MV/cm.

Or les résultats en phase gazeuse montrent que α varie d'abord exponentiellement, puis linéairement en fonction du champ électrique. Ces régions sont suivies d'un domaine de variation en $E^{1/2}$ puis d'une saturation [66]. Ceci confirme d'une certaine manière que la valeur obtenue est très inférieure à la valeur de α

correspondant à la saturation.

IV.2.3.6 - Calcul théorique du coefficient α

IV.2.3.6.1 - Cas général

Soit f(v) la distribution cinétique des électrons. Cette fonction est reliée à la distribution énergétique g(ε) par les relations :

$$\varepsilon = \frac{m\ v^2}{2q}$$

avec : ε, énergie en eV
v, vitesse
q, charge de l'électron
m, masse de l'électron

et :
$$g(\varepsilon) = \left(\frac{q}{2m\varepsilon}\right)^{1/2} f\left[\left(\frac{2q\varepsilon}{m}\right)^{1/2}\right]$$

Si ν_c est la fréquence de collision avec les atomes, P_i la probabilité d'ionisation d'un atome par un électron et N(ε) le nombre d'électrons d'énergie ε, le nombre d'ionisations secondaires dN_i sera [57] :

$$\frac{dN_i}{dt} = N(\varepsilon)\ \nu_c\ P_i$$

Dans le liquide, l'électron n'est jamais en espace "libre" donc la notion de collision est plus floue que dans un gaz. Il est cependant possible de définir un libre parcours moyen λ à partir de l'expression de la section efficace microscopique σ de collision avec les électrons.

De même que dans les gaz λ, σ et N_a, le nombre d'atomes par unité de volume sont liés par la relation :

$$\lambda = \frac{1}{N_a\ \sigma}$$

Par définition :

$$\alpha = \frac{dN_i}{N_e\ dl}$$

avec : dl, élément de déplacement dans le sens du champ électrique
N_e, nombre d'électrons.

D'où :
$$\alpha = \frac{1}{N_e}\frac{dN_i}{dt}\frac{dt}{dl} = \frac{1}{\overline{v_d}\ N_e}\frac{dN_i}{dt}$$

Par suite :
$$\alpha = \frac{N(\varepsilon)\ \nu_c\ P_i}{\overline{v_d}\ N_e}$$

Dans le cas d'une distribution continue des énergies, il existe les relations suivantes :

$$N(\varepsilon) = g(\varepsilon)\, dE \quad \text{avec} \quad \int_o^\infty g(\varepsilon)\, d\varepsilon = N_e$$

et $P_i = o$ pour $\varepsilon < \varepsilon_i$ (ε_i énergie d'ionisation en eV)
d'où, pour l'ensemble du nuage électronique :

$$\alpha = \frac{1}{\overline{v_d}} \int_{\varepsilon_i}^\infty \nu_c\, P_i\, \frac{g(\varepsilon)}{N_e}\, d\varepsilon = \frac{1}{\overline{v_d}} \int_{\varepsilon_i}^\infty \nu_c\, P_i\, n(\varepsilon)\, d\varepsilon$$

avec $\frac{g(\varepsilon)}{N_e} = n(\varepsilon)$.
D'autre part, ν_c peut s'écrire :

$$\nu_c = \frac{v}{\lambda} = N\sigma\, v$$

Il vient : $$\alpha = \frac{1}{\overline{v_d}} \int_{\varepsilon_i}^\infty N\sigma\, P_i \left(\frac{2q\varepsilon}{m}\right)^{1/2} n(\varepsilon)\, d\varepsilon$$

L'expression $N\sigma\, P_i$ est la section efficace macroscopique d'ionisation Σ_i du gaz rare par collision avec un électron. En première approximation, Σ_i peut s'écrire [52] :

$$\Sigma_i = a\, \frac{\varepsilon - \varepsilon_i}{\varepsilon_i} \qquad \text{avec a, une constante.}$$

Il vient enfin :

$$\alpha = \left(\frac{2q}{m}\right)^{1/2} \frac{a}{\overline{v_d}\, \varepsilon_i} \int_{\varepsilon_i}^\infty (\varepsilon - \varepsilon_i)\, \varepsilon^{1/2}\, n(\varepsilon)\, d\varepsilon$$

IV.2.3.6.2 - Cas d'une distribution de Maxwell

Dans ce cas, l'expression de $n(\varepsilon)$ est : [57]

$$n(\varepsilon)\, d\varepsilon = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}\right)^{1/2} e^{-\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}}\, d\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}\right)$$

avec ε_m : énergie la plus probable des électrons. L'énergie moyenne $\overline{\varepsilon}$ des électrons est égale à :

$$\overline{\varepsilon} = \frac{3}{2}\, \varepsilon_m$$

Par suite : $$\alpha = \left(\frac{2q}{m}\right)^{1/2} \frac{2a(\varepsilon_m)^{3/2}}{\overline{v_d}\, \varepsilon_i\, \sqrt{\pi}} \int_{\varepsilon_i}^\infty \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}\right) \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_i}{\varepsilon_m}\right) e^{-\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}}\, d\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}\right)$$

IV.2.3.6.3 - Cas d'une distribution de Druyvesteyn

Dans ce cas [57] :

$$n(\varepsilon)\, d\varepsilon = \frac{2}{\Gamma(3/4)} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)^{1/2} e^{-\frac{\varepsilon^2}{\varepsilon_o{}^2}} d\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)$$

avec : $\varepsilon_o = \left(\frac{2\lambda^2 E^2}{3\delta}\right)^{1/2}$ en eV

E, champ électrique

$\delta = \frac{2m}{M}$, fraction d'énergie perdue à chaque collision

M, masse de l'atome

m, masse de l'électron

$$\Gamma(3/4) = \int_o^\infty x^{-1/4}\, e^{-x}\, dx = 1{,}23$$

Le calcul montre que :

$$\bar{\varepsilon} = \frac{\Gamma(5/4)}{\Gamma(3/4)}\, \varepsilon_o \qquad \text{avec} \quad \Gamma(5/4) = \int_o^\infty x^{1/4}\, e^{-x}\, dx$$

$$\varepsilon_m = \frac{\varepsilon_o}{2} \qquad = 0{,}90$$

Par suite :

$$\alpha = \left(\frac{2q}{m}\right)^{1/2} \frac{2a\, \varepsilon_o{}^{3/2}}{\overline{v_d}\, \varepsilon_i\, \Gamma(3/4)} \int_{\varepsilon_i}^\infty \left(\frac{\varepsilon-\varepsilon_i}{\varepsilon_o}\right) \frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\, e^{-\frac{\varepsilon^2}{\varepsilon_o}}\, d\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)$$

IV.2.3.6.4 - Cas d'une distribution tenant compte de collisions inélastiques

Les collisions inélastiques, dont les effets peuvent être une ionisation ou une excitation, limitent l'énergie moyenne du nuage électronique, à cause du transfert important d'énergie de l'électron à l'atome.

La distribution en énergie des électrons sera donc considérablement modifiée pour les valeurs de l'énergie supérieures à la plus basse énergie d'excitation ε_e. Pour $\varepsilon < \varepsilon_e$, la distribution est sensiblement une distribution de Druyvesteyn [65] soit :

$$n(\varepsilon) = \frac{A}{\varepsilon_o} \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)^{1/2} e^{-\frac{\varepsilon^2}{\varepsilon_o{}^2}} \qquad \text{avec A, une constante de normalisation.}$$

Pour $\varepsilon > \varepsilon_e$, la nouvelle équation de transport est [67] :

$$\frac{d^2n}{d\varepsilon^2} - \frac{4\varepsilon^2 - \varepsilon_o{}^2}{2\, \varepsilon_o{}^2\, \varepsilon} \frac{dn}{d\varepsilon} + \frac{MP(\varepsilon)}{m\varepsilon_o{}^2}\, n = o$$

avec P(ε), probabilité de collision inélastique. En supposant que

$$P(\varepsilon) = K(\varepsilon-\varepsilon_c)$$

avec : K, une constante

ε_c, une énergie critique nécessaire à l'expression analytique de $P(\varepsilon)$ d'après les résultats expérimentaux [68],

l'expression de $n(\varepsilon)$ est, en supposant $\varepsilon/\varepsilon_o << 1$ et $\frac{M}{m}\frac{P(\varepsilon)}{\varepsilon_o^2} >> 1$

$$n(\varepsilon) = e^{-\frac{\varepsilon^2}{2\varepsilon_o^2}} \; x^{1/2} \left[BI_{1/3}\left(\tfrac{2}{3}\, x^{3/2}\right) + CI_{-1/3}\left(2/3\, x^{3/2}\right)\right]$$

avec : $x = \left(\frac{KM}{\varepsilon_o^2 m}\right)^{1/3} (\varepsilon-\varepsilon_c)$

$I_{1/3}$ et $I_{-1/3}$, fonctions de Bessel modifiées d'ordre 1/3 et -1/3,

B et C, des constantes assurant la continuité de $n(\varepsilon)$ pour $\varepsilon = \varepsilon_e$ et déterminées avec A de façon que :

$$\int_o^\infty n(\varepsilon)\, d\varepsilon = 1$$

D'après Druyvesteyn et Penning [67], une bonne approximation de la solution exacte est obtenue en prenant $P(\varepsilon)$ constante et égale à $P(\varepsilon_2)$ avec ε_2 définie comme suit :

$$\varepsilon_2 = \varepsilon_e + \tfrac{2}{3}\,(\varepsilon_i-\varepsilon_e)$$

D'où la solution approchée :

- pour $\varepsilon < \varepsilon_e$

$$n(\varepsilon) = \frac{A}{\varepsilon_o}\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)^{1/2} \frac{e^{-\left(\frac{\varepsilon_e}{\varepsilon_o}\right)^2}}{e^{-\rho\left(\frac{\varepsilon_e}{\varepsilon_o}\right)}}\; e^{-\rho\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}}$$

avec $\rho = \left[\frac{M\, P(\varepsilon_2)}{m}\right]^{1/2}$

Cette dernière solution sera donc utilisée pour le calcul de α.

IV.2.3.6.5 - Calcul de α en fonction de ε

D'après la méthode décrite en IV.2.3.6.1 et en supposant que la distribution énergétique des électrons soit successivement une distribution de Maxwell, Druyvesteyn ou une distribution tenant compte des collisions inélastiques, il est possible de calculer α en prenant : [57]

$$\frac{a}{\varepsilon_i} = 0{,}71 \text{ p équivalente (cas de l'argon)}$$

avec p équivalente = 6.10^5 torrs.

En raison du manque de données expérimentales concernant le xénon, nous avons considéré que le rapport :

$$\frac{a}{p_{\text{équivalente}}} \quad \text{est invariant.}$$

D'où, pour le xénon : $\frac{a}{\varepsilon_i} = 0{,}93$ p équivalente

avec p équivalente = 4.10^5 torrs.

Les valeurs des probabilités d'ionisation et d'excitation sont déduites des travaux de Maïer-Leibnitz [68] sur l'argon.

Les valeurs relatives au xénon sont déduites des valeurs relatives à l'argon grâce à la relation empirique :

$$\frac{p_{X_e}}{p_A} = \frac{\varepsilon_a{}^A}{\varepsilon_{a_{X_e}}}$$

avec $\varepsilon_a{}^A$ et $\varepsilon_{a_{X_e}}$ énergies d'excitation ou d'ionisation de l'argon et du xénon.

Dans le cas du calcul supposant une distribution comme en IV.2.3.6.4, la solution approchée, plus maniable, a été retenue. Le calcul est alors effectué sous forme de développements limités en puissances de $\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}$.

La figure 37 résume les résultats de ces calculs, le paramètre énergétique retenu étant l'énergie moyenne $\bar{\varepsilon}$ des électrons.

D'après cette figure, il apparaît que, pour atteindre une valeur donnée de α, l'énergie moyenne des électrons correspondante croît dans l'ordre : distribution de Maxwell, de Druyvesteyn, distribution tenant compte des collisions inélastiques.

Physiquement, les énergies des électrons sont distribuées selon une loi de Maxwell lorsque l'énergie des atomes du milieu est du même ordre de grandeur que celle des électrons. Ceux-ci sont en équilibre avec le milieu et la distribution sera donc très étalée.

Lorsque le champ électrique fournit suffisamment d'énergie aux électrons, ceux-ci dissipent cet excédent par échange avec les atomes lors de collisions élastiques. Le milieu s'opposera donc d'autant plus à la pénétration des électrons les plus énergétiques. Ces derniers seront donc moins nombreux. Analytiquement ceci se traduit par une loi en $e^{-\left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_o}\right)^2}$ au lieu d'une loi en $e^{-\frac{\varepsilon}{\varepsilon_m}}$.

Enfin, la perte d'énergie lors d'une collision inélastique étant très importante par rapport à la perte lors d'une collision élastique, le nombre d'électrons d'énergie supérieur à ε_e sera beaucoup plus faible que dans le cas des deux distributions précédentes. L'énergie moyenne des électrons devra donc être augmentée considérablement pour atteindre une même valeur de α.

IV.2.3.7 - Calcul de l'énergie moyenne des électrons en fonction du champ électrique

Les résultats expérimentaux permettent de connaître la variation du coefficient α avec le champ électrique E. Les calculs théoriques du paragraphe précédent donnent la loi de variation de α en fonction de l'énergie moyenne $\bar{\varepsilon}$ des électrons. Il devient donc possible de déduire l'énergie moyenne des électrons en fonction du

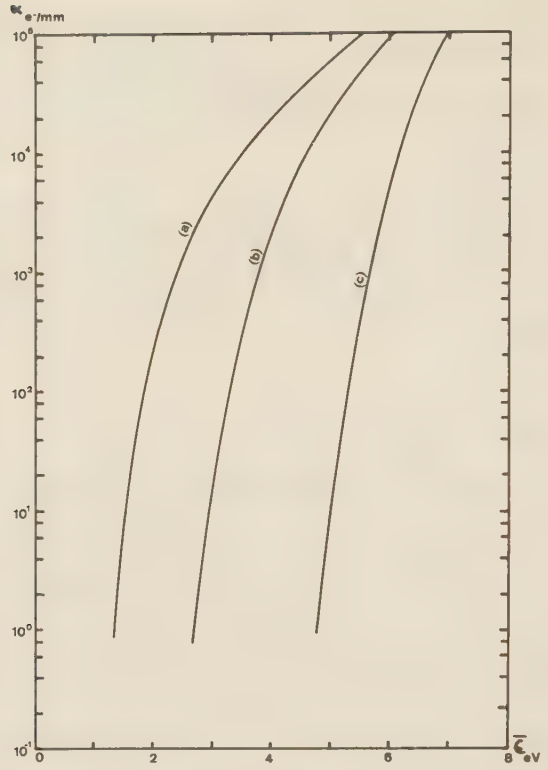


Figure 37 - Variation de α en fonction de l'énergie moyenne des électrons dans le xénon liquide (d'après les calculs théoriques) :
a - distribution de Maxwell,
b - distribution de Druyvesteyn,
c - distribution tenant compte des collisions inélastiques.

champ électrique par comparaison des résultats expérimentaux et des calculs théoriques.

La figure 38 montre la variation de l'énergie moyenne des électrons dans le xénon liquide en fonction du champ électrique pour les trois types de distribution énergétique choisis (courbe a : distribution de Maxwell, courbe B : distribution de Druyvesteyn, courbe c : distribution tenant compte des collisions inélastiques). Il est intéressant de comparer ces résultats à ceux obtenus antérieurement par d'autres groupes et adaptés au cas du xénon liquide.

La formule de Compton [69] donne la loi de variation de la vitesse de déplacement $\overline{v_d}$ des électrons soit :

$$\overline{v_d} = \frac{q^{1/2}\,\lambda E}{(2m\varepsilon)^{1/2}}$$

avec ε, en eV

λ, libre parcours moyen des électrons.

La valeur de λ est estimée à partir des résultats de J. Lekner dans l'argon liquide [23] et adaptée au cas du xénon liquide grâce à la relation :

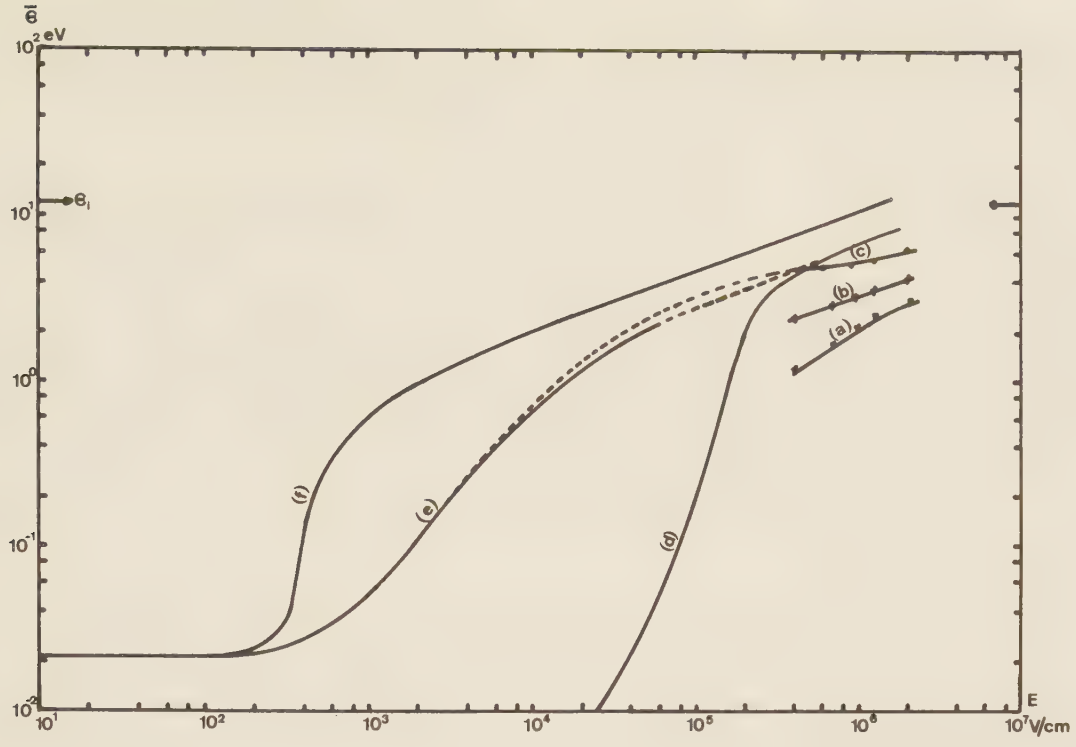


Figure 38 - Energie moyenne des électrons en fonction du champ électrique dans le xénon liquide :
a - distribution de Maxwell,
b - distribution de Druyvesteyn,
c - distribution tenant compte des collisions inélastiques,
d - courbe déduite à partir de valeurs expérimentales de la mobilité,
e - courbe déduite à partir de la théorie de J. Lekner,
f - courbe déduite des mesures de D/μ dans l'argon gazeux.

$$\frac{\lambda_{Xe}}{\lambda_A} = \frac{N_A}{N_{Xe}} \frac{\sigma_A}{\sigma_{Xe}} = \frac{N_A}{N_{Xe}} \left(\frac{R_A}{R_{Xe}}\right)^2$$

avec : N_A et N_{Xe}, nombre d'atomes par unité de volume dans l'argon et le xénon liquides,

R_A et R_{Xe}, rayons des atomes d'argon et de xénon.

Avec $\lambda_A = 8$ Å [23], il vient $\lambda_{Xe} = 9$ Å.

La courbe d est donc obtenue par comparaison des résultats expérimentaux montrant $\bar{v}_d/E$ en fonction de $\bar{\varepsilon}$. La courbe e est déduite des valeurs d'énergie moyenne des électrons calculés par J. Lekner d'après sa théorie sur le déplacement des électrons dans l'argon liquide. Ces résultats sont également applicables au déplacement des électrons dans le xénon liquide en admettant que $\bar{\varepsilon}$ est la même à rapport E/d égal (avec d, densité). La courbe f est déduite de mesures en phase gazeuse du

rapport D/μ (D, coefficient de diffusion ; μ, mobilité des électrons) en fonction du champ électrique [70].

L'argon et le xénon sont supposés présenter le même rapport D/μ pour une même valeur de E/d.

Il existe par ailleurs une relation simple entre D/μ et $\bar{\varepsilon}$ [69]:

$$\frac{3}{2}\frac{D}{\mu} = \bar{\varepsilon}$$

Par conséquent, les résultats expérimentaux permettent de déduire directement $\bar{\varepsilon}$ en fonction de E.

Il est intéressant de remarquer la cassure de la courbe d due à la distinction entre le libre parcours moyen relatif à l'échange d'énergie λ_e et celui concernant le transfert de moment cinétique λ_m, les variations de ce dernier régissant la variation de la vitesse de déplacement des électrons. Le rapport λ_e/λ_m est égal au facteur de structure de Van Hove S. [23] dont la valeur est directement liée aux corrélations entre les interactions potentielles des atomes voisins, c'est-à-dire à l'ordre à courte distance et à court terme que voient les électrons se déplaçant dans le milieu.

Pour les faibles valeurs du champ électrique, S est égal à 0,05 [23] dans l'argon liquide et est voisin de l'unité pour des électrons très énergétiques ou des milieux non corrélés tels que les gaz. D'après J. Lekner, λ_e/λ_m est égal à l'unité pour des champs électriques supérieurs à 5.10^5 V/cm [23] pour lesquels l'influence des collisions inélastiques se fait déjà sentir. La théorie de J. Lekner est bien adaptée au déplacement des électrons dans les liquides soumis à un champ électrique dont la valeur est inférieure à 5.10^4 V/cm correspondant à des énergies moyennes de l'ordre de 2,5 eV.

Pour des valeurs de champ électrique très fortes, comme dans le cas d'un fonctionnement en régime proportionnel, nous pensons que la distribution tenant compte des collisions inélastiques est la plus proche de la distribution réelle, la limitation de $\bar{\varepsilon}$ a environ 6 eV étant due à la première énergie d'excitation du xénon soit 8,4 eV.

IV.3 - CONCLUSIONS

D'après les résultats précédents, il est donc apparu que le déclenchement contrôlé d'avalanches électroniques est possible dans le xénon liquide et non dans l'argon liquide. Cette différence de comportement peut être attribuée à deux raisons :

- D'une part, l'énergie d'ionisation de l'atome de xénon (12,1 eV) est plus faible que celle de l'atome d'argon (15,8 eV). Cette énergie est donc plus facilement atteinte malgré l'effet de la densité du milieu.

- D'autre part, le rayon de l'atome de xénon (4,3 Å) est supérieur à celui de l'atome d'argon (3,7 Å). Les espaces entre les atomes sont donc plus importants et permettent un déplacement plus facile des électrons qui ont ainsi plus de chances d'acquérir une énergie égale à l'énergie d'ionisation sous l'action accélératrice du champ électrique (dont l'amplitude est de l'ordre de 10^6 V/cm).

Il se peut aussi que, dans le xénon liquide, l'effet Ramsauer, s'il existe, soit plus important que dans l'argon liquide.

Une condition nécessaire au bon fonctionnement en régime proportionnel est l'utilisation de liquides très purs, dont la teneur en impuretés électronégatives est au plus égale à 80 ppb équivalents d'oxygène, le critère de jugement étant la résolution en énergie (au maximum 20 % à 25 %). Dans ces conditions, dans la région la plus proche du fil d'anode, environ 3 000 électrons secondaires sont créés par millimètre lors de l'avalanche.

Le déclenchement de ces avalanches dans le xénon liquide rend donc possible la détection de particules de faible énergie (supérieure à 50 keV). L'amplification apportée par l'avalanche est cependant limitée par la décharge due aux photons émis lors de l'avalanche à des gains compris entre 10 et 50 selon la géométrie de la chambre. La mise en forme électronique entraîne aussi une réduction importante du gain (d'un facteur 2 à 10), à cause du très long temps de transit des ions donc du très long temps de montée de l'impulsion due aux charges induites.

Chapitre V

LES MELANGES DE LIQUIDES

Nous appellerons mélange un liquide constitué pour la plus grande partie d'un gaz noble liquéfié auquel a été ajouté des impuretés polyatomiques.

V.I - ETATS ENERGETIQUES D'UNE MOLECULE

La mécanique quantique montre que les atomes d'une molécule peuvent osciller par rapport à la position moyenne qu'ils occupent dans l'édifice moléculaire.

D'autre part, la molécule elle-même peut tourner autour de l'axe ou d'un des axes de symétrie de cette molécule [71]. Tout comme les niveaux d'énergie atomiques, les énergies correspondant aux différents mouvements de vibration ou de rotation sont quantifiés.

Lors d'une oscillation avec une particule chargée ou un photon, la molécule peut passer d'un état énergétique à un autre en empruntant à la particule l'énergie de transition entre ces niveaux. Ces énergies sont très faibles, généralement comprises entre 10^{-2} eV et 2 eV. Les sections efficaces correspondant à ces réactions de collision sont élevées et varient peu avec l'énergie de la particule incidente. La molécule se trouve alors dans un état instable ou excité.

Le retour à l'état fondamental peut se faire de plusieurs manières :

- Emission d'un quantum d'énergie correspondant à la différence d'énergie $\Delta\varepsilon$ entre le niveau excité et le niveau fondamental ;

- Echange de l'énergie $\Delta\varepsilon$ au cours d'une collision avec un atome ou une autre molécule, l'énergie étant emportée sous forme d'énergie cinétique ;

- Dissociation en fragments, ceux-ci emportant le reliquat d'énergie sous forme d'énergie cinétique. Ce dernier cas se produit surtout lorsque l'énergie $\Delta\varepsilon$ absorbée est importante (cas, par exemple, d'une neutralisation après une ionisation).

V.2 - CONSEQUENCES DES PROPRIETES D'EXCITATION DES NIVEAUX D'ENERGIE MOLECULAIRES

V.2.1 - Absorption des photons

Un photon d'énergie $h\nu$ peut céder tout ou partie de son énergie à une molécule X, d'autant plus facilement que son énergie est légèrement supérieure à l'énergie d'excitation possible [72].

Cette excitation peut aller jusqu'à l'ionisation (photoionisation).

Les différentes réactions possibles, à partir de la réaction de base

$$h\nu + X \rightarrow X^*$$

avec X^* : molécule excitée, sont les suivantes :

$X^* \rightarrow X + h\nu$ - a) réémission

$X^* \rightarrow X^+ + e$ - b) photoionisation

$X^* \rightarrow A_1 + B_1$ - c) dissociation

$X^* \rightarrow A_2^+ + B_2 + e^-$ - d) dissociation ionisante

$X_1^* + X_2 \rightarrow X_1 + X_2 +$ énergie cinétique - e) stabilisation.

La réaction a) est aussi très probable quand l'énergie adsorbée est grande, la durée de vie de l'état excitée étant d'autant plus courte.

La réaction e) est une réaction typique de stabilisation par collision (cf. paragraphe III.3.2.2 concernant l'attachement des électrons aux atomes et aux molécules d'oxygène).

V.2.2 - Transfert d'énergie

Lorsque l'énergie d'ionisation d'une molécule est inférieure à l'énergie d'excitation ou d'ionisation d'un atome, il peut y avoir transfert de cette énergie de l'atome à la molécule qui est alors ionisée. La section efficace de transfert de charge est du même ordre de grandeur que la section efficace de collision élastique. Elle est d'autant plus grande que la différence entre l'énergie d'excitation ou d'ionisation de l'atome et de l'énergie d'ionisation de la molécule est plus petite. Lorsque cette énergie excède notablement l'énergie d'ionisation de la molécule, il y a alors dissociation, processus ayant cependant une section efficace plus réduite [57].

V.2.3 - Neutralisation d'un ion moléculaire

Après la neutralisation, la molécule ayant en excès l'énergie, se trouve dans un état excité.

Cette énergie en excès sert, de façon préférentielle, à dissocier la molécule en fragments neutres, ceux-ci emportant le reste de l'énergie d'ionisation sous forme d'énergie cinétique. Ainsi, lorsque l'ion positif sera neutralisé à la cathode, l'énergie libérée aura peu de chances d'arracher un électron au métal de la cathode (cf. paragraphe IV.1.4.1).

V.3 - INTERET DE LA PRESENCE D'IMPURETES MOLECULAIRES DANS LES GAZ NOBLES LIQUEFIES

V.3.1 - Réduction de l'effet photoélectrique sur la cathode

D'après le paragraphe V.2.1, les impuretés moléculaires absorbent facilement les photons jusqu'à des énergies très basses. L'effet photoélectrique sera donc réduit de façon appréciable. La concentration en impuretés moléculaires sera donc choisie en fonction de la section efficace d'absorption de ces molécules, de la

géométrie du détecteur et du nombre estimé de photons émis par avalanche.

V.3.2 - Réduction du nombre d'atomes excités

Lorsque le transfert de charge ou d'énergie est possible (énergie d'ionisation des impuretés inférieure à l'énergie d'excitation des atomes), les impuretés moléculaires peuvent servir à produire une ionisation supplémentaire masquée auparavant sous forme d'énergie d'excitation des atomes.

Par exemple, dans le cas du système argon-méthane en phase gazeuse, l'énergie d'ionisation du méthane (13,1 eV) est inférieure à l'énergie d'excitation de l'argon (13,3 eV et 14 eV). Dans ce cas, les expériences en phase gazeuse montrent que l'énergie moyenne d'ionisation $\overline{W}$ du mélange est inférieure à celles de l'argon et du méthane. La figure 39 montre la variation de $\overline{W}$ en fonction de la concentration de méthane [73].

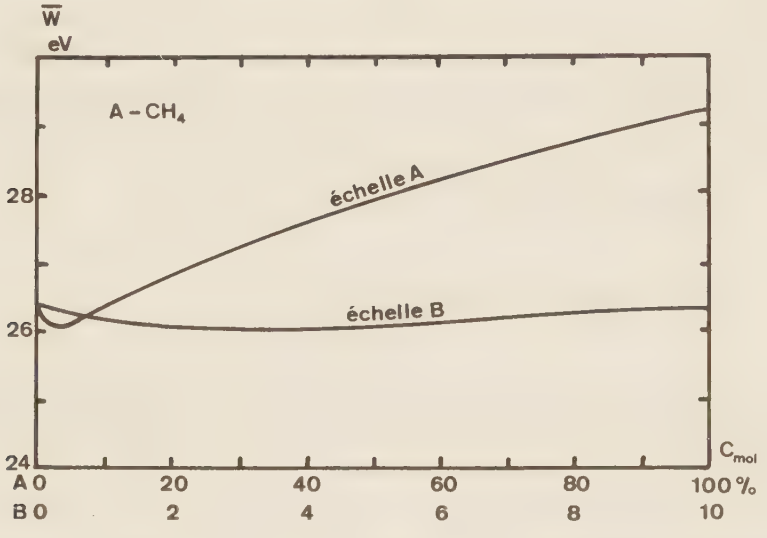


Figure 39 - Variation de $\overline{W}$ dans l'argon-méthane en fonction de la concentration de méthane (d'après la référence [73]).

V.3.3 - Réduction de l'émission cathodique due aux ions

De même que dans le paragraphe précédent, le transfert de charge a une très grande probabilité de se produire lors d'une collision d'un ion atomique avec une molécule si le transfert de charge est énergétiquement possible. Le nouvel ion sera unique si la différence d'énergie d'ionisation est relativement faible mais pourra être dissocié en fragments si cette différence est grande [72].

Par exemple, dans le cas d'un ion argon entrant en collision avec une molécule de méthane en phase liquide, la réaction sera :

$$A^+ + CH_4 \rightarrow A + CH_4^+ + \text{énergie cinétique.}$$

Dans le cas d'une collision avec une molécule de propane ou d'éthylène, elle sera [74][75] :

$$A^+ + \begin{vmatrix} C_3\ H_8 \\ C_2\ H_4 \end{vmatrix} \rightarrow A + \begin{vmatrix} (C_3\ H_8^+)^* \\ (C_2\ H_4^+)^* \end{vmatrix}$$

et : $(C_3 H_8^+)^* \rightarrow C_2 H_4^+ + CH_4$; $(C_2 H_4^+)^* \rightarrow C_2 H_2^+ + H_2$

Ces ions moléculaires neutralisés à la cathode ont peu de chances d'arracher un électron au métal. Le coefficient γ_i sera donc très faible.

V.3.4 - Estimation de la quantité d'impuretés moléculaires nécessaire

V.3.4.1 - Réduction de l'effet photoélectrique

Si σ_Φ est la section efficace d'absorption du gaz polyatomique, c_Φ la concentration en impuretés, N_o le nombre d'atomes par unité de volume du gaz noble liquéfié, r_K le rayon de la cathode, le nombre de photons atteignant la cathode au cours d'une avalanche sera :

$$n = n_o \, e^{-(\sigma_\Phi c_\Phi N_o r_K)}$$

avec n_o, nombre de photons émis par avalanche.

Ces n photons arracheront γ_p n photoélectrons dont seulement $\gamma_p K_m$ n seront effectivement libérés dans le milieu de détection (cf. paragraphe IV.1.4.5).

Si G est le gain maximal choisi et K_p le nombre de photons produits pour une ionisation secondaire, c_Φ sera choisie de telle façon que :

$$\gamma_p K_p K_m G \, e^{-(\sigma_\Phi c_\Phi N_o r_K)} = \gamma G < 1$$

ou :

$$c_\Phi = \frac{-1}{\sigma_\Phi N_o r_K} \text{Log} (\gamma_p K_p K_m G).$$

N.B. : Si le rapport K_p choisi correspond à l'élément monoatomique pur, l'estimation du produit γG dans le mélange sera par excès en raison des transferts possibles d'énergie.

V.3.4.2 - Réduction de $\bar{W}$

D'après les expériences de Hurst et Bortner en phase gazeuse, il existe pour chaque système de composants une valeur optimale C_W de la concentration en impuretés pour laquelle $\bar{W}$ est minimale. Le tableau suivant en donne quelques exemples avec, comme constituant principal, l'argon [76] :

Impuretés	C_W %	$\bar{W}_{min}$ eV
Acétylène	0,5	20,4
N-butane	1,5	22,9
Gaz carbonique	5	26
Méthane	5	26
Ethane	3	24,4
Ethylène	1	23,9
Iso-butane	1,2	23,2
Propane	3	23,6
Propylène	1,3	23,8

V.3.4.3 - Réduction de γ_i

γ_i diminue de quatre ordres de grandeur si les ions qui atteignent la cathode sont des ions moléculaires. Le transfert de charge est un processus si efficace que sa probabilité de réalisation est voisine de l'unité après 4 ou 5 collisions.

Si c_i est la concentration en molécules d'impuretés et N_o le nombre d'atomes par unité de volume du principal constituant, la distance moyenne entre deux molécules est :

$$\lambda_{mol} = (N_o\ c_i)^{-1/3}$$

c_i sera donc choisie de telle façon que :

$$5(N_o\ c_o)^{-1/3} < r_K$$

où $c_i > \dfrac{125}{N_o\ r_K^3}$.

V.3.4.4 - Bilan

La concentration en impuretés c_{mol} sera choisie égale à la plus forte des concentrations déterminées précédemment :

$$c_{mol} = \max\ (c_\Phi,\ c_w,\ c_i)$$

En général l'expérience montre :

$$c_i << c_\Phi$$

et $$c_i << c_w$$

et, dans la plupart des cas, $c_{mol} = c_\Phi$.

V.4 - INFLUENCE DES IMPURETES MOLECULAIRES SUR LES PROPRIETES DE TRANSPORT DES ELECTRONS

La perte d'énergie de l'électron lors d'une collision avec une molécule est beaucoup plus grande que lors d'une collision avec un atome de gaz rare. Ce processus de collision inélastique permet une disposition plus efficace de l'énergie acquise par l'électron dans le champ électrique, d'où un accroissement du moment cinétique.

En considérant que les pertes par collision entre l'électron et les atomes de gaz rare d'une part et entre l'électron et les molécules d'impuretés d'autre part sont des événements indépendants, il est possible d'écrire que le taux d'énergie acquise dans le champ est égale à la somme des taux de perte d'énergie par collision, d'où :

$$qE\ \bar{v}_d = \frac{\bar{v}}{\lambda_G}\ \Delta\varepsilon_G + \frac{\bar{v}_d}{\lambda_{mol}}\ \Delta\varepsilon_{mol}$$

avec $q = 1{,}6.10^{-19}$ C

$\bar{v}$, vitesse propre des électrons

λ_G, libre parcours moyen de transfert d'énergie dans le liquide

$\Delta\varepsilon_G$, perte d'énergie par collision avec un atome de gaz rare
$\bar{v}_d$, vitesse de déplacement des électrons ;
λ_{mol}, distance moyenne entre deux molécules d'impuretés
$\Delta\varepsilon_{mol}$, perte d'énergie par collision avec une molécule d'impureté.

Si C_{mol} est la concentration en impuretés en ppm et N_o, le nombre d'atomes de gaz rare par unité de volume, il vient :

$$\lambda = (10^{-6}\ c_{mol}\ N_o)^{-1/3} = 10^2\ (c_{mol}\ N_o)^{-1/3}$$

Par suite : $\bar{v}_d \left[qE - 10^{-2}\ (c\ N_o)^{1/3}\ \Delta\varepsilon_{mol} \right] = \frac{\bar{v}}{\lambda_G}\ \Delta\varepsilon_G$.

En supposant, à champ électrique donné, que λ_G et $\bar{v}$ sont constants, il est possible d'écrire, lorsque $c_{mol} = 0$:

$$\bar{v}_{d_o} = \frac{\bar{v}}{\lambda_G}\ \frac{\Delta\varepsilon_G}{qE}$$

D'où la relation finale :

$$\frac{\bar{v}_d - \bar{v}_{d_o}}{\bar{v}_{d_o}} = \frac{10^{-2}\ (c_{mol}\ N_o)^{1/3}}{qE}\ \Delta\varepsilon_{mol}$$

V.5 - METHODE EXPERIMENTALE

V.5.1 - Choix des liquides

Nous avons choisi l'argon comme liquide de base, en raison de son faible prix de revient. Les impuretés moléculaires qui présentent les courbes de changement d'état liquide-gaz les plus proches de celle de l'argon sont l'azote et le méthane.

Nous avons choisi le méthane en raison du plus faible coefficient de piégeage électronique qu'il présente dans ce liquide.

Le méthane est purifié à l'aide d'un deuxième dispositif de même manière que les gaz rares mais sans four à magnésium et en utilisant une colonne refroidie à une température supérieure à -78°C (-30°C ou 0°C).

V.5.2 - Méthode expérimentale

L'argon est purifié de façon classique dans le banc de purification déjà décrit. Lorsqu'un mélange est présent dans le banc, seule la branche du condensateur est utilisée, les colonnes et le four étant isolés afin d'éviter toute contamination par le méthane (adsorption ou "cracking").

Un volume connu, prévidé avant chaque dosage, permet d'introduire dans la réserve d'argon une quantité donnée de méthane par simple contrôle de la pression.

Le mélange argon-méthane est liquéfié de la même façon que l'argon pur. Il a été vérifié par ailleurs que l'argon et le méthane sont miscibles en phase

liquide pour des concentrations de méthane inférieures ou égales à 30 %. Dans ce cas, la courbe de changement d'état liquide-gaz est sensiblement la même que celle de l'argon pur.

V.5.3 - Résultats expérimentaux

V.5.3.1 - Résultats en chambre d'ionisation plane

La figure 40 résume les résultats expérimentaux en chambre plane de 1 mm d'épaisseur avec une source d'américium 241 (particules α de 5,5 MeV) sur la cathode.

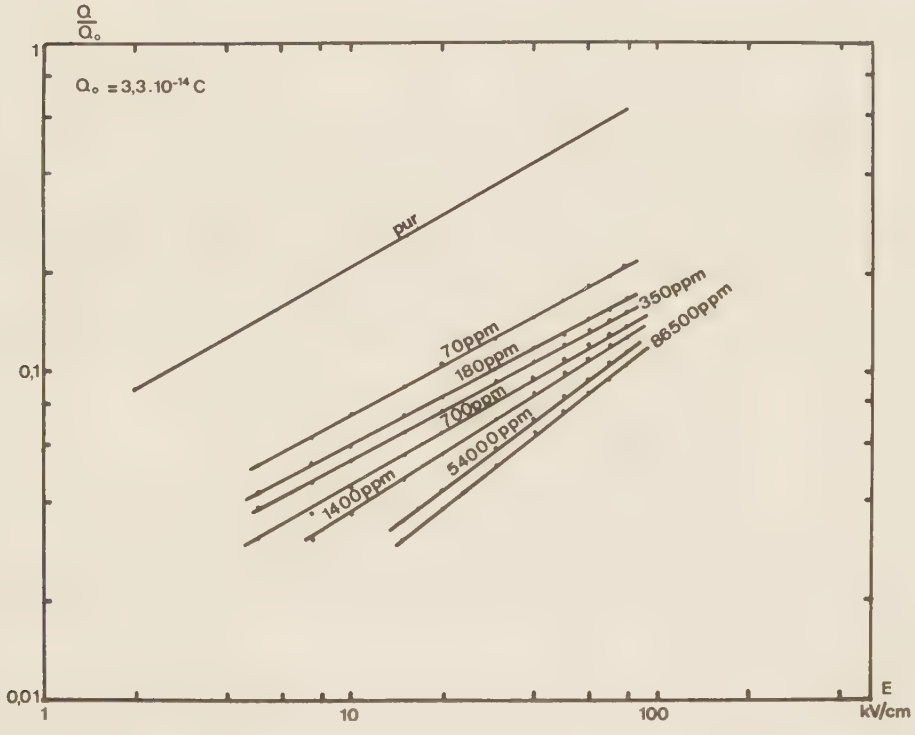


Figure 40 - Charge collectée en chambre plane (d = 1 mm; source α de l'américium 241 - 5,5 MeV) en fonction du champ électrique et de la concentration de méthane.

Dans les mêmes conditions de champ électrique, la charge collectée diminue lorsque c_{mol} augmente et reste, dans tous les cas inférieure à celle collectée dans l'argon liquide pur (avec $0,51 < n$, $n = \frac{\partial(\mathrm{Log}Q/Q_o)}{\partial(\mathrm{Log}\ E)} < 0,73$).

Les spectres d'amplitude des impulsions induites sur les électrodes sont semblables à ceux obtenus dans l'argon liquide pur (spectre asymétrique montrant la dépendance de la recombinaison en colonne avec l'angle entre la trace ionisée et la direction du champ électrique - largeur à mi-hauteur de la raie correspondant au bruit équivalent en charges ramenées à l'entrée de l'amplificateur augmenté de la fluctuation exprimée en charges équivalentes de la position du centre de gravité

de la trace de la particule α).

V.5.3.1.1 - Attachement

Par comparaison avec l'argon pur, il est possible de déduire le coefficient d'attachement du méthane dans l'argon liquide à fort champ électrique.

D'après le paragraphe III.1.2.5, la quantité de charges totale induite sur l'anode est :

$$\frac{Q_M}{Q_o} = \frac{1 - e^{-\beta_{mol} d}}{\beta_{mol} d}$$

avec d, épaisseur de la lame de détection
β_{mol}, coefficient d'attachement
Q_o, quantité de charges libérée dans le liquide
Q_n, quantité de charges induite sur l'anode.

La quantité Q_o est la quantité de charges injectée dans l'argon liquide après séparation des ions et des électrons. Il faut donc séparer les effets dus à la recombinaison de ceux dus à l'attachement. La mesure des courants continus dus à l'ionisation dans la chambre remplie d'argon liquide pur (pris comme référence avec $\beta \equiv o$ soit I_A) et remplie de mélange (soit I_M) permet cette séparation.

En effet si Q_A et Q_M sont les quantités de charges collectées dans les mêmes conditions de champ électrique dans l'argon liquide pur et dans le mélange, il vient alors :

$$\frac{Q_M}{Q_o} = \frac{Q_M}{Q_A} \times \frac{I_A}{I_M}$$

En supposant que les propriétés des mélanges argon-méthane et argon-azote sont semblables en ce qui concerne la recombinaison en colonne, la courbe de la figure 41, déduite des mesures de Swan [49] donne I_A/I_M en fonction de la concentration c_{mol} exprimée en ppm. Expérimentalement, Swan a montré que I_A/I_M est indépendant du champ électrique.

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus en chambre de 1 mm d'épaisseur montrent que β_{mol}/c_{mol} est quasi - indépendant de c_{mol} sauf pour les fortes valeurs de c_{mol}. Cet effet est dû à la réduction de l'énergie moyenne des électrons causée par les collisions inélastiques avec les molécules de méthane.

La figure 42 représente la variation de β_{mol}/c_{mol} en fonction du champ électrique. En reportant les résultats représentés en figure 29, il apparaît que l'attachement des électrons aux molécules de méthane dans l'argon liquide est du même ordre de grandeur que l'attachement électronique aux molécules d'azote dans le domaine des champs électriques élevés et est vraisemblablement dû a un piégeage avec détachement possible de l'électron.

V.5.3.1.2 - Vitesse de déplacement des électrons

La figure 43 rassemble les résultats expérimentaux ainsi que les résultats de Swan avec le système argon-azote. De ces mesures, il apparaît que la présence de méthane en concentration aussi faible que 1 % entraîne une augmentation d'un

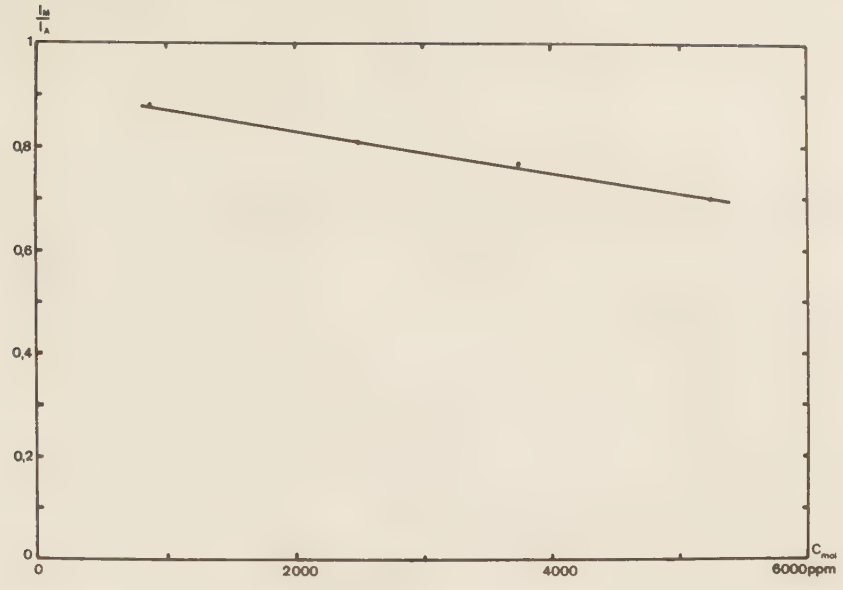


Figure 41 - Variation de I_M/I_A en fonction de la concentration d'azote dans l'argon liquide (d'après la référence [49]).

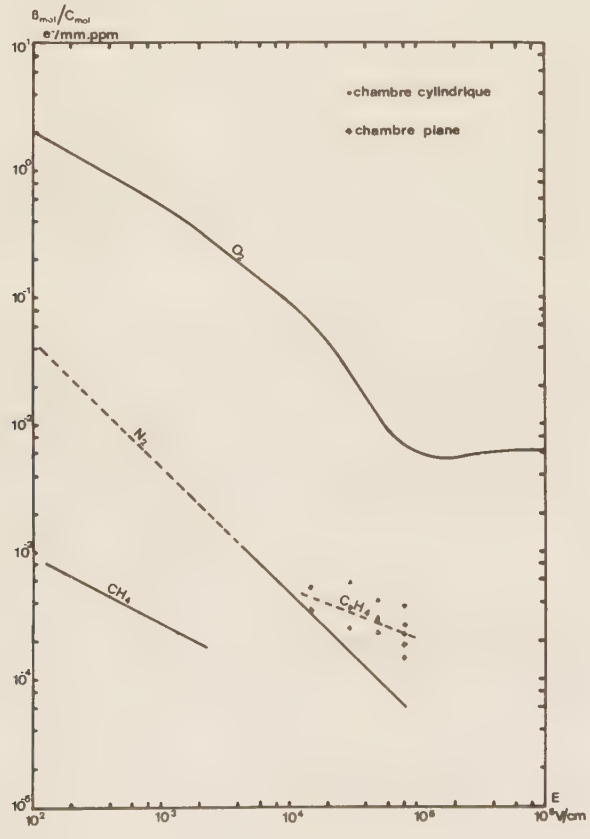


Figure 42 - Variation de β_{mol}/C_{mol} en fonction du champ électrique dans le système argon-méthane liquide.

facteur 2 de la vitesse de déplacement des électrons. Les courbes de la figure 44 montrent aussi un déplacement de la région correspondant à la saturation de $\bar{v}_d$ vers le domaine des champs électriques plus élevés.

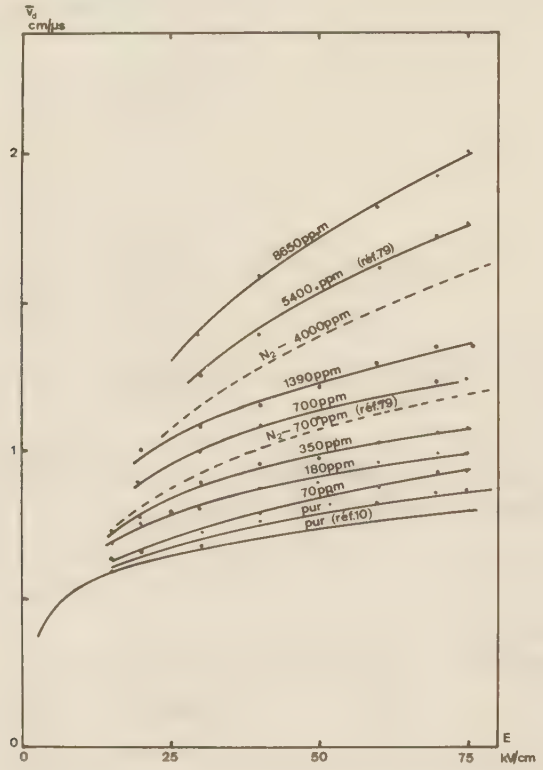


Figure 43 - Variation de $\bar{v}_d$ en fonction du champ électrique et de la concentration C_{mol} de méthane dans l'argon liquide.

D'après Garcia-Molliner, ceci serait causé par un équilibre entre les processus de diffusion par les phonons acoustiques (en $E^{1/2}$) et par les impuretés moléculaires (en $E^{3/2}$) [77]. Ce déplacement de l'équilibre se traduit par une augmentation de la pente des courbes $\bar{v}_d(E)$ quand la concentration de méthane croît.

Par ailleurs, en coordonnées logarithmiques, il apparaît que les valeurs expérimentales de $\frac{\bar{v}_d - \bar{v}_{d_o}}{\bar{v}_d}$ en fonction de c_{mol} sont situées approximativement sur une droite de pente 1/3 sauf dans la région des fortes concentrations de méthane où l'effet des collisions inélastiques des électrons avec les molécules de méthane se fait sentir (figure 44).

D'après la figure 44, nous trouvons :

$$\Delta\varepsilon_{mol} = 540 \text{ meV}$$

Cette valeur est bien dans le domaine des énergies de rotation ou de vibration des molécules complexes.

Il semble donc que, dans ce système, les phénomènes de transport soient largement dominés par le processus de diffusion des électrons par collision avec les molécules d'impuretés.

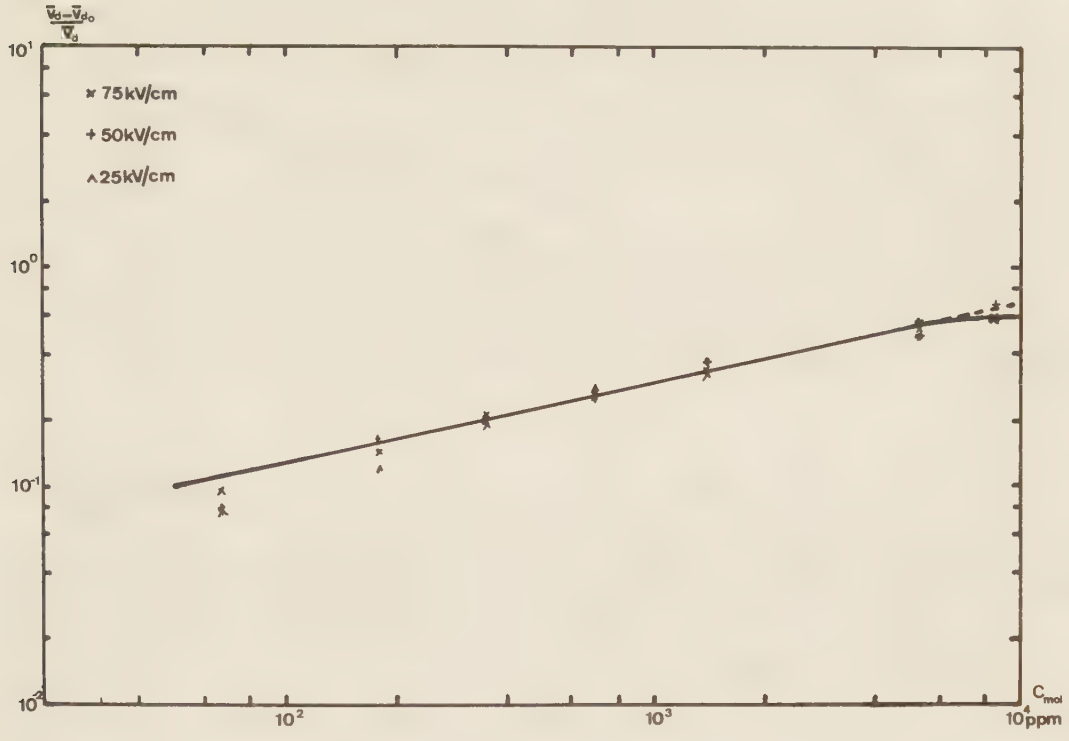


Figure 44 - Variation de $\frac{\bar{v}_d-\bar{v}_{d_o}}{\bar{v}_d}$ en fonction de la concentration C_{mol} de méthane dans l'argon liquide.

V.5.3.2 - Résultats en chambre d'ionisation cylindrique

Les résultats concernent l'effet d'attachement (permanent ou temporaire) des électrons aux molécules de méthane.

La figure 45 montre la charge collectée en chambre cylindrique (r_A = 0,1 mm; r_K = 8,5 mm ; source de ^{60}Co) en fonction du champ électrique et de la concentration de méthane dans l'argon liquide.

La figure 46 présente la variation de Log Q/Q_o ($Q_o = 6{,}3.10^{-15}$ C) en fonction de la concentration de méthane, le champ électrique étant pris comme paramètre. Les points sont, dans ce cas aussi, sur des droites sauf pour les fortes concentrations de méthane, donc β_{mol}/c_{mol} est constant. La courbe β_{mol}/c_{mol}, reportée en figure 43 montre que à faible champ électrique, le coefficient a (cf. paragraphe III.2.1.3) est égale à 0,54.

Cette faible pente montre que l'attachement est relativement indépendant du champ électrique, donc de l'énergie moyenne des électrons. Ceci est en accord avec la valeur élevée et relativement constante quand l'énergie des électrons varie, de la section efficace de collision inélastique des électrons avec les molécules

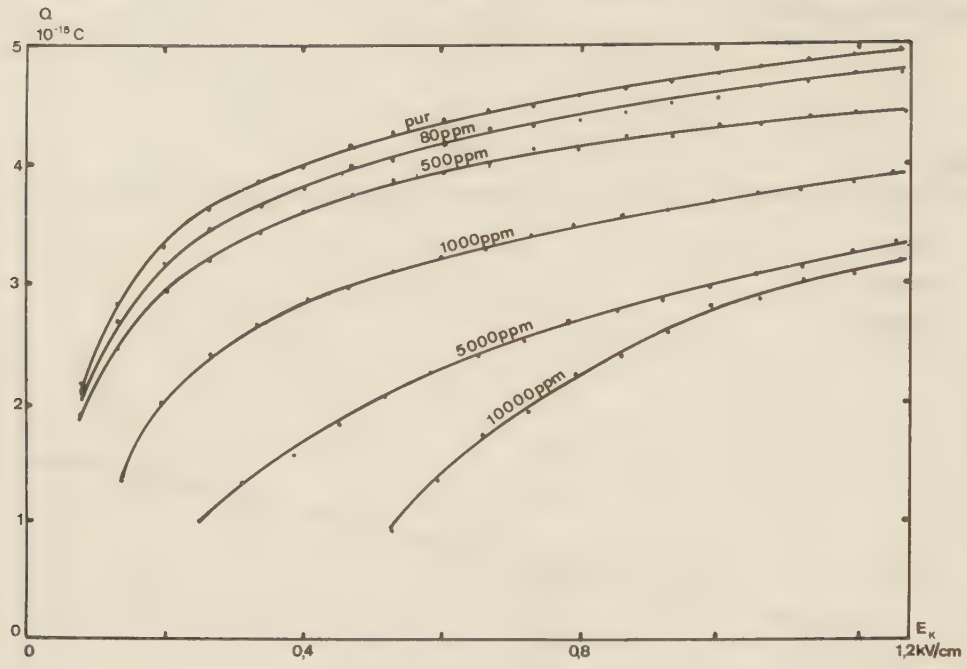


Figure 45 - Charge collectée en chambre d'ionisation cylindrique (r_A = 0,1 mm ; r_K = 8,5 mm ; source ^{60}Co) en fonction du champ électrique (paramètre : C_{mol}).

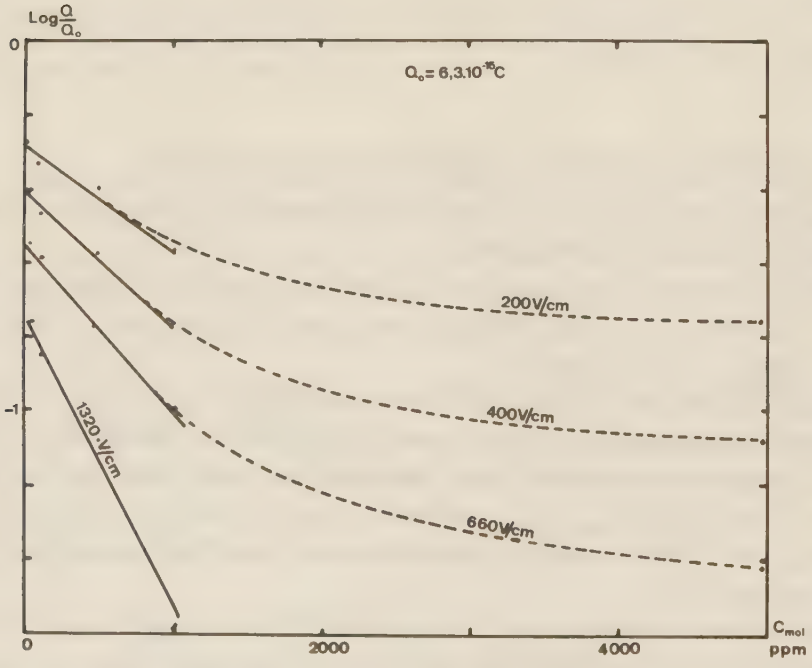


Figure 46 - Variation de Log Q/Q_o en fonction de c_{mol} dans le système argon-méthane liquide (paramètre : champ électrique).

polyatomiques, la molécule de méthane dans l'argon liquide pouvant tourner sur elle-même presqu'aussi librement qu'en phase gazeuse [78].

V.5.3.3 - Résultats en régime proportionnel

La chambre utilisée a une cathode de 17 mm de diamètre et une anode en acier inoxydable de 7,5 μ de diamètre. De même qu'en argon pur et pour des concentrations en méthane comprises entre 100 ppm et 10 000 ppm, la chambre fonctionne en collection directe jusqu'à ce que le champ électrique sur l'anode atteigne environ 2 MV/cm.Cette valeur,plus élevée que dans le cas de l'argon liquide pur, montre l'effet du méthane en tant qu'agent d'étouffement lorsque le champ dépasse 2 MV/cm, il y a décharge entretenue.

En conclusion, bien que le méthane contribue à étouffer la décharge (champ critique de claquage plus élevé), la présence d'impuretés polyatomiques réduit l'énergie moyenne des électrons (collisions inélastiques). Il y a donc moins d'électrons qui ont des chances d'acquérir une énergie égale à l'énergie d'ionisation.

V.5.4 - Conclusion

L'addition de méthane en faibles quantités provoque des modifications importantes des phénomènes de transport des électrons dans l'argon liquide.

Les collisions inélastiques avec les molécules ont pour effet :

- d'augmenter la recombinaison en colonne,
- d'augmenter la vitesse moyenne de déplacement des électrons,
- de réduire l'énergie moyenne des électrons.

Ces deux derniers effets sont caractéristiques de l'effet Ramsauer en phase gazeuse. Cette propriété particulière des atomes de gaz rares lourds (argon, krypton, xénon) est due à la valeur très faible de la section efficace de collision élastique pour des électrons d'énergie voisine de 1 eV. Le gaz est alors quasi-transparent aux électrons. Dans le liquide, cet effet semble aussi exister. Cependant, d'après les calculs de J. Lekner [23], la section efficace de collision avec les électrons d'énergie voisine de 1 eV serait beaucoup plus élevée dans le liquide que dans le gaz. Il conclut donc à l'absence de l'effet Ramsauer dans le liquide. Le manque de données expérimentales relatives à la section efficace de collision ne permet pas de savoir si l'effet de densité du liquide supprime l'effet Ramsauer.

L'addition de molécules d'éthane ou d'éthylène au xénon liquide doit vraisemblablement avoir les mêmes effets. Nous n'avons cependant pas effectué ces vérifications pour deux raisons :

- l'addition de méthane à l'argon liquide n'améliore guère le fonctionnement en régime proportionnel,

- il est relativement difficile de repurifier le xénon de l'éthane ou de l'éthylène qu'il contiendrait sans contaminer le piège à tamis moléculaire et le four à magnésium.

Chapitre VI

LA LOCALISATION DES PARTICULES

VI.1 - GENERALITES

VI.1.1 - Principe de localisation choisi

Le principe de base repose sur l'utilisation des charges induites sur la cathode par le déplacement des électrons (fonctionnement en chambre d'ionisation) ou par le déplacement des ions (fonctionnement en régime proportionnel) [9].

Afin de déterminer les deux coordonnées du point où a eu lieu une interaction nucléaire, la cathode est divisée en deux plans parallèles au plan d'anode constitué d'un réseau de fils parallèles séparés par une distance s (cas d'un fonctionnement en régime proportionnel). Les deux plans de cathodes sont symétriques par rapport au plan d'anode (distance entre les plans d'anode et de la cathode notée L) et constitués de deux réseaux de bandes parallèles au pas s et orthogonales d'un plan de cathodes à l'autre.

Dans le cas d'un détecteur fonctionnant en chambre d'ionisation la structure de détection est constituée d'un plan d'anode et d'un plan de cathode séparés par une distance L et constitués de bandes parallèles au pas s. Les bandes de cathode et d'anode sont orthogonales et fournissent ainsi les deux coordonnées du lieu d'interaction nucléaire.

L'information est donc quantifiée, la largeur s déterminant approximativement le pouvoir séparateur du détecteur.

Chaque cellule élémentaire de détection est donc constituée par le volume délimité par l'intersection (en projection) de deux bandes.

Le codage matriciel de l'adresse réduit donc de façon considérable le nombre de voies de mesure (une pour chaque bande), soit pour un détecteur de nxn cellules 2 n voies au lieu de n^2.

Les charges induites sur une bande sont proportionnelles à l'angle solide Ω suivant lequel est vue la bande, soit du point où s'est déclenchée l'avalanche (fonctionnement en régime proportionnel), soit du point où est présent le nuage de charges primaires (fonctionnement en chambre d'ionisation).

En régime proportionnel, si L est la distance entre les plans de la cathode et d'anode, s le pas de bandes de cathode, l'angle solide Ω_o sous lequel est vue la plus proche cathode (notée K_o) est :

$$\Omega_o = 2 \operatorname{Arctg} \frac{sL}{L^2 - \frac{s^2}{4}}$$

Les autres bandes K_i seront vues sous un angle solide Ω_i égal à

$$\Omega_i = 2 \text{ Arctg } \frac{sL}{L^2+(i^2-\frac{1}{4})s^2}$$

avec i nombre de cathodes à partir de la cathode 0 (de part et d'autre de celle-ci).

Il apparaît donc que :

- La quantité de charges Q_o induite sur la cathode K_o n'est qu'une fraction de la quantité de charges totale mise en jeu. Elle est une fonction décroissante du rapport L/s ;

- Les quantités de charges recueillies sur les cathodes voisines sont inférieures à Q_o mais d'autant plus voisines de Q_o que L/s est grand. Ces impulsions de charges constituent autant de signaux parasites donnant lieu à des ambiguités d'adresse d'interaction. Une sélection électronique logique sera donc nécessaire afin de trouver le centre de gravité de ce groupe d'adresses.

Or par ailleurs, l'efficacité de détection est une fonction croissante de L. Sa valeur est un facteur important intervenant dans le choix des dimensions du détecteur.

En effet, en médecine nucléaire, les rayons γ émis par le traceur présent dans l'organe à explorer le sont dans toutes les directions. Afin d'établir une correspondance sans ambiguité entre l'image obtenue et la densité réelle de traceur dans l'organe il faut sélectionner en direction les rayons grâce à un collimateur à trous parallèles intercalé entre l'organe et le détecteur. La transparence d'une telle optique est très faible (de 10^{-4} à 10^{-3} pour une source plane et isotrope). La sélection en énergie permet aussi de rejeter les événements Compton associés aux photons diffusés dans l'organe. Ceux-ci peuvent être acceptés par le collimateur mais cependant être issus d'un atome émetteur dont la position est très différente de l'adresse obtenue lors de la détection du photon diffusé. Cette sélection en énergie diminue encore le nombre d'informations utiles.

L'activité de la source étant limitée par la dose absorbée admissible, il convient donc de choisir une valeur de L la plus grande possible, en rapport avec la valeur du pas s choisi (facilité de discrimination des fausses adresses - L/s compris entre 1 et 1,5).

VI.1.2 - Résolution spatiale

VI.1.2.1 - Définition

La résolution spatiale est définie comme la largeur à mi-hauteur du pic de la réponse spatiale (en nombre de coups) du détecteur à une source ponctuelle collimatée. Il est donc possible de définir une résolution intrinsèque du détecteur (sans collimateur) et une résolution globale de tout l'ensemble.

Cette définition caractérise parfaitement la réponse du détecteur si elle est gaussienne mais est insuffisante pour caractériser une réponse d'un type différent.

Ceci a conduit à rechercher une définition plus formelle de la résolution spatiale.

VI.1.2.2 - Fonction de transfert de modulation (FTM)

De façon semblable à la réponse harmonique des circuits électroniques, il est possible de définir une réponse harmonique d'un système d'imagerie, les fréquences temporelles étant remplacées par des fréquences spatiales.

Expérimentalement, la fonction de transfert de modulation est déterminée à partir de la réponse du détecteur à une source dont l'intensité varie sinusoïdalement dans l'espace.

La fonction de transfert de modulation est définie par [80]:

$$FTM\ (1/a) = \frac{\text{Contraste image}}{\text{Contraste objet}}$$

avec A/a : nombre de périodes par millimètre de la source.

Les constrastes image et objet sont définis de la façon suivante :

$$C_{image} = \frac{I_M(1/a) - I_m(1/a)}{I_M(1/a) + I_m(1/a)}$$

avec I_m et I_M, intensités minimale et maximale de la modulation de l'image. De même:

$$C_{objet} = \frac{A_M(1/a) - A_m(1/a)}{A_M(1/a) + A_m(1/a)}$$

avec A_m et A_M, intensités minimale et maximale de la source.

La fonction de transfert de modulation ainsi définie présente l'inconvénient de ne l'être qu'avec des mires sinusoïdales difficilement réalisables.

Sa mesure ne peut se faire que point par point.

Une autre expression plus formelle et plus complète consiste en l'analyse de Fourier de la transmission d'un signal ayant la forme d'un pic de Dirac (source fortement collimatée très étroite par exemple).

Si $E^*(\nu)$ est le spectre de fréquence du signal d'entrée et $S^*(\nu)$ celui du signal de sortie (avec ν, fréquence spatiale), alors :

$$|S^*(\nu)| = FTM(\nu) \times |E^*(\nu)|$$

Le spectre d'un pic de Dirac étant uniforme $\left(E^*(\nu) = \frac{1}{\pi}\right)$, il vient :

$$FTM(\nu) = K\ |S^*(\nu)|$$

K étant un coefficient de normalisation tel que FTM (0) = 1.

Si S(x) est la réponse d'une cellule de détection à une source collimatée (avec x abscisse de la source à partir de l'axe de la cellule), alors :

$$FTM(\nu) = K \left| \int_{-\infty}^{+\infty} S(x) \cos 2\pi\nu\, dx \right|$$

Un exemple concret est le cas où $S(x) = N_o$ (avec N_o une constante) pour :

$$-s/2 < x < s/2$$

Dans ce cas, il vient :

$$FTM(\nu) = \frac{|\text{Sin } \pi\nu s|}{\pi\nu s}$$

Cette fonction de transfert est représentée en figure 47.

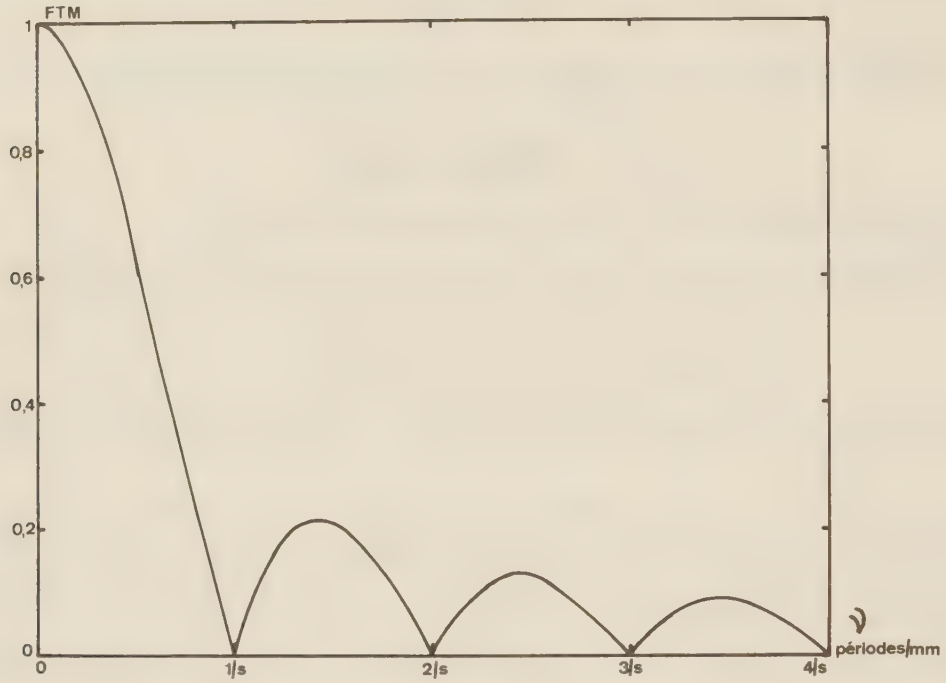


Figure 47 - Fonction de transfert de modulation d'un détecteur ayant une réponse uniforme sur toute la largeur d'une cellule.

VI.1.2.3 - Nouvelle définition de la résolution spatiale

La résolution spatiale sera définie comme étant la période spatiale correspondant à une atténuation d'un facteur 20 de la fonction de transfert de modulation [81]. Dans le cas d'une courbe de réponse gaussienne, cette définition est équivalente à celle du paragraphe V.1.2.1.

En effet, soit une réponse en e^{-x^2} , la largeur à mi-hauteur est $2\sqrt{\text{Log}2}$ périodes par unité de longueur. La valeur de la fonction de transfert de modulation est 0,03, correspondant sensiblement à la deuxième définition.

En fait, la dernière définition est plus complète car elle donne en plus la valeur de la modulation transmise par le détecteur.

VI.1.2.4 - Phénomènes limitant la résolution spatiale

Dans un multidétecteur, la résolution spatiale est, en première approximation, égale au pas s. En principe, elle peut donc être améliorée en diminuant la distance entre anodes. Cependant, certaines limitations, dues à des phénomènes purement physiques, font apparaître une limite inférieure du pas.

VI.1.2.4.1 - Limitations liées à la détection

La particule chargée qui ionise le milieu perd toute son énergie sur une certaine distance (parcours). La projection de cette trace ionisée sur le plan d'anode peut introduire une ambiguité quand elle se partage entre une ou plusieurs cellules de détection.

Le parcours de particules chargées lourdes dans le xénon est cependant très réduit (quelques dizaines de microns). D'autre part, la diffusion multiple d'un électron énergétique dans le xénon liquide est si importante que le nuage électronique primaire est de dimensions très inférieures au parcours maximal théorique de l'électron incident. Ce parcours réel peut être estimé par une méthode du type Monte-Carlo. Le tableau suivant résume les résultats obtenus par le groupe de Berkeley [63].

Energie de l'électron (keV)	100	200	500	1 000
Longueur du nuage (mm) dans le xénon liquide	0,012	0,057	0,11	0,21
Parcours maximal dans le xénon liquide (mm)	0,085	0,26	1	2,4

La valeur limite de s sera donc du même ordre de grandeur, soit quelques dizaines de microns.

Dans le cas de photons, il peut y avoir diffusion Compton,le photon diffusé étant détecté à son tour à une distance non négligeable (par rapport à s) du point de première interaction. Ces interactions multiples peuvent cependant créer dans la chambre une charge équivalente à celle créée lors d'un effet photoélectrique. La probabilité d'absorption totale par interaction multiple devient d'ailleurs non négligeable par rapport à celle due à l'effet photoélectrique quand l'énergie du rayonnement incident augmente. Cependant, les interactions multiples créent des nuages d'électrons en différents points dont les distances au lieu de première interaction peuvent être du même ordre de grandeur que s. La figure 48 montre la probabilité d'une deuxième interaction à une distance x (projection sur un seul axe de coordonnées) de la première interaction Compton d'après Zaklad et al [63]. Ces probabilités sont rapportées à la probabilité totale d'interaction dans le xénon liquide.

Cette figure montre que la diffusion des photons peut dégrader de façon appréciable la résolution spatiale quand s diminue.

Enfin, dans le cas de particules au minimum d'ionisation, la trace ionisée traverse tout l'espace de détection. La résolution spatiale dépend donc surtout de l'angle de la trajectoire avec le normale aux plans d'électrodes.

VI.1.2.4.2 - Limitation liée à la migration des charges

Les électrons, en se déplaçant vers l'anode sont diffusés par les chocs avec les atomes ou molécules du milieu. Dans le cas d'un nuage d'électrons, cet effet se manifeste par un étalement du nuage. D'après Loeb [69], l'accroissement Δd du

diamètre du nuage est donné par la relation :

$$\Delta d = \sqrt{2Dx/\bar{v}_d}$$

avec D, coefficient de diffusion des charges
x, distance parcourue.

Dans le xénon liquide D est de l'ordre de 10 $cm^2.s^{-1}$, donc les charges diffusent d'environ 8 µ en parcourant 100 µ. Cet effet ne deviendra donc important que pour les très faibles valeurs de s.

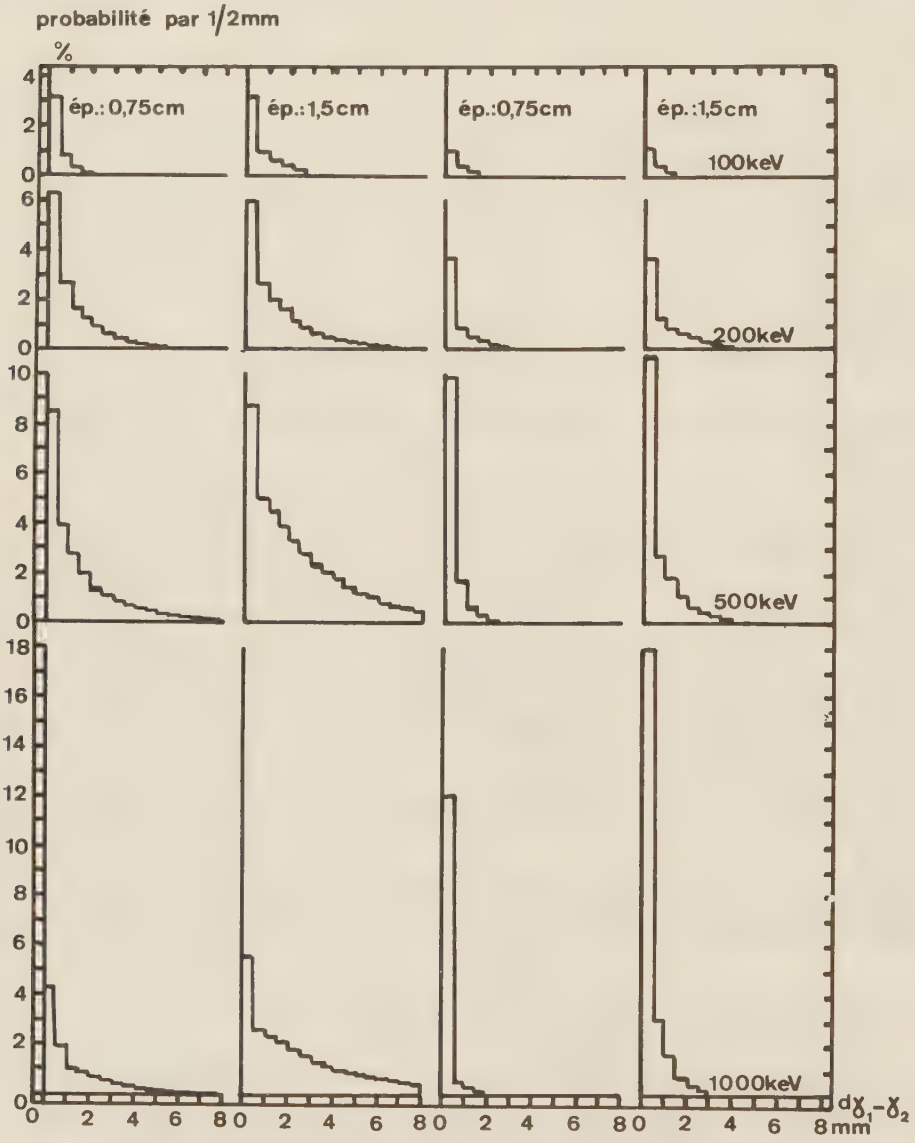


Figure 48 - Distance entre la première et la deuxième interaction Compton dans le xénon liquide en fonction de l'énergie du rayonnement incident et de l'épaisseur du détecteur d'après la référence [63] :
a - Sans sélection en amplitude
b - Avec sélection (de 90 % à 100 % de l'amplitude maximale).

VI.1.2.4.3 - Limitation_due_à_l'avalanche_électronique

Les phénomènes ayant lieu lors de l'avalanche électronique peuvent contribuer à la propagation de l'avalanche le long du fil d'anode (début de fonctionnement en régime Geiger). Cet effet dû principalement aux photons de désexcitation, peut aussi se propager aux anodes voisines si s est suffisamment petit.

VI.1.2.4.4 - Bilan

D'après les paragraphes précédents, les limitations liées à la détection des particules chargées sont négligeables devant celles dues à la diffusion des rayonnements électromagnétiques. La résolution spatiale limite correspondra donc à des valeurs de s plus faibles dans le cas de particules chargées lourdes (théoriquement 20 μ à 50 μ) que dans le cas d'électrons énergétiques ou de photons (0,2 mm à 1 mm).

VI.1.2.5 - Réduction_des_effets_limitant_la_résolution_spatiale

Afin de réduire la dégradation de la résolution spatiale et, par conséquent, d'améliorer la qualité des images obtenues, il est souhaitable d'opérer une sélection en amplitude des impulsions obtenues en sortie de chaque voie de mesure.

Si les impulsions retenues ont une amplitude correspondant à l'énergie du rayonnement (effet photoélectrique), les impulsions correspondant à des interactions Compton simples et à des partages de la trace d'ionisation sur plusieurs cellules seront éliminées.

La figure 48 montre l'amélioration obtenue dans le cas d'interactions Compton lorsqu'une sélection en énergie est effectuée d'après la référence [63] [sélection des impulsions dont l'amplitude est comprise entre 90 % et 100 % de l'amplitude des impulsions dues à un effet photoélectrique). Ce procédé présente cependant l'inconvénient de réduire notablement l'efficacité totale de détection et ce d'autant plus que l'énergie du rayonnement incident est élevée (diminution très rapide de la section efficace de l'effet photoélectrique par rapport à la section efficace d'effet Compton).

VI.1.3 - Paramètres_électrostatiques_d'un_détecteur_fonctionnant_en_régime_proportionnel

VI.1.3.1 - Potentiel,_champ_électrique

La distance entre les plans de cathodes étant petite devant leurs dimensions, la configuration électrostatique peut être considérée comme ayant deux dimensions. D'après Erskine [82], le potentiel complexe en un point d'affixe z = x + ks + y (x, coordonnée dans le plan d'anode, y, coordonnée normale aux plans d'électrode, le nombre entier) est :

$$\Psi(z) = Q \left[\frac{2\pi L}{s} - 2 \operatorname{Log} \left(2 \sin \frac{\pi z}{s} \right) \right]$$

avec Q charge des fils par unité de longueur.

Dans l'hypothèse où le rayon r_A des fils est petit devant s, Q est donnée

par la relation :

$$Q = \frac{V_o}{\frac{2\pi L}{s} - 2 \operatorname{Log} \frac{2\pi r_A}{s}}$$

Par suite le module du champ électrique sera :

$$|\vec{E}| = Q \left|\frac{\partial \Psi(3)}{\partial z}\right| = \frac{2\pi Q}{s} \left|\operatorname{cotg}\left(\frac{\pi z}{s}\right)\right|$$

Lorsque z = x + ks il vient :

$$E_x = \frac{2\pi Q}{s} \operatorname{cotg}\left(\frac{\pi x}{s}\right)$$

et lorsque z = jy

$$E_y = \frac{2\pi Q}{s} \operatorname{coth}\left(\frac{\pi y}{s}\right)$$

Il est intéressant de remarquer les expressions limites de $|\vec{E}|$ lorsque $|z|$ tend vers r_A et de E_y lorsque y tend vers L lorsque $|z|$ tend vers r_A, $|\frac{\pi z}{s}|$ est très petit devant l'unité et, par suite, $|\vec{E}|$ tend vers $\frac{2Q}{|z|}$ ou, sous une autre forme :

$$E = \frac{2Q}{r} = \frac{V_o}{\left(\frac{\pi L}{s} - \operatorname{Log} \frac{2\pi r_A}{s}\right) r}$$

Le champ électrique est le même que dans une chambre cylindrique dont le rayon r_K de la cathode serait tel que :

$$\operatorname{Log} \frac{r_K}{r_A} = \frac{\pi L}{s} - \operatorname{Log} \frac{2\pi r_A}{s}$$

Lorsque y tend vers L, coth $\frac{\pi y}{s}$ tend vers l'unité et le champ devient uniforme, ayant pour valeur

$$E_o = \frac{2\pi Q}{s} = \frac{\pi V_o}{\pi L - s \operatorname{Log} \frac{2\pi r_A}{s}}$$

La figure 49 résume ces différentes propriétés. La figure 50 montre les équipotentielles et les lignes de champ dans une chambre multifils d'après Charpak et al [2].

VI.1.3.2 - Effets de l'inhomogénéité des paramètres géométriques

VI.1.3.2.1 - Variation du rayon d'un fil

En supposant qu'un fil indicié 0 ait un rayon $r_A + \Delta r_A$, sa charge Q_o varie d'une quantité ΔQ_o, par couplage électrostatique, celles des autres fils varient de Δq_k (k étant tel que la coordonnée du fil est $x_k = \pm ks$).

La figure 51 montre la variation des coefficients $e_k = \frac{\Delta Q_k / Q_k}{\Delta r_A / r_A}$ en fonction de L/s d'après Erskine [82].

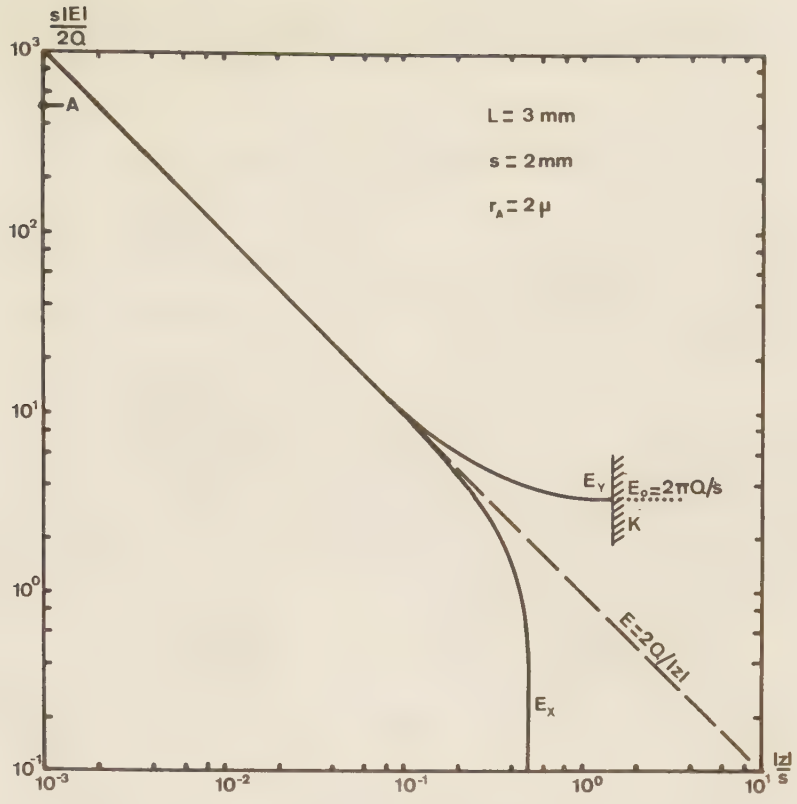


Figure 49 - Champ électrique en chambre multifils en fonction des coordonnées dans le plan d'anode et normale au plan d'anode.

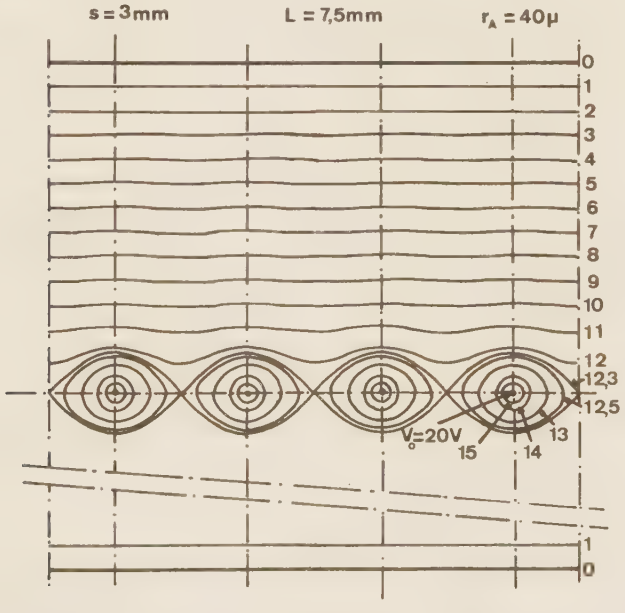


Figure 50 - Equipotentielles et lignes de champ en chambre multifils (d'après la référence [2]).

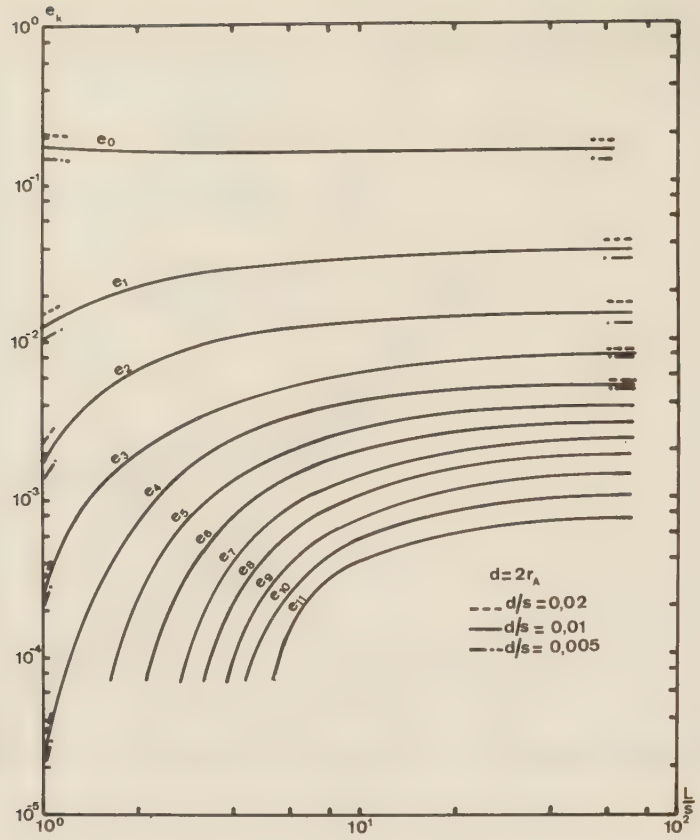


Figure 51 - Variation des coefficients e_k en fonction de L/s (d'après la référence [2]).

VI.1.3.2.2 - Déplacement d'un fil (erreur de positionnement)

Si le fil d'indice zéro est déplacé de $z = x + i\ y$, la variation de la charge du fil d'indice k sera, en première approximation

$$\Delta Q_k/Q_k = a_1^k\left(\frac{\Delta x}{s}\right) + b_1^k\left(\frac{\Delta y}{s}\right) + a_2^k\left(\frac{\Delta x}{s}\right)^2 + b_2^k\left(\frac{\Delta y}{s}\right)^2 + \ldots$$

pour $k = o$ $a_1^o \equiv o$ car ΔQ_o ne varie pas si Δx change de signe.

De même, la chambre étant symétrique par rapport au plan d'anode, ΔQ_K ne change pas si Δy change de signe, donc :

$$b_1^j \equiv o$$

D'autre part, $\frac{\Delta x}{s}$ ou $\frac{\Delta y}{s}$ étant petit, $a_2^k\left(\frac{\Delta x}{s}\right)^2$ devient négligeable devant $a_1^k\left(\frac{\Delta x}{s}\right)$ pour $k \neq o$, d'où les relations finales :

$$\Delta Q_o/Q_o \# a_2^o\left(\frac{\Delta x}{s}\right)^2 + b_2^o\left(\frac{\Delta y}{s}\right)^2$$

$$\Delta Q_k/Q_k \# a_1^k\left(\frac{\Delta x}{s}\right) + b_2^k\left(\frac{\Delta y}{s}\right)^2$$

La figure 52 montre les variations de ces coefficients en fonction de L/s d'après

Erskine [82]. Il est intéressant de remarquer que les coefficients b_2^k tendent vers zéro pour des valeurs de L/s proche de 1,7.

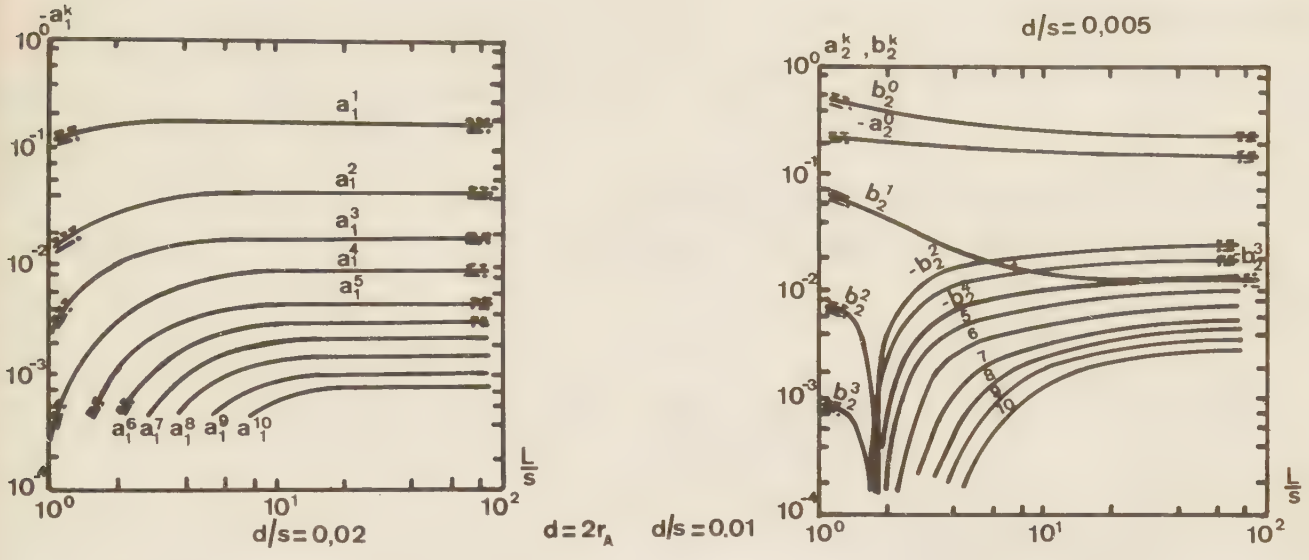


Figure 52 - Variation des coefficients a_1^k, a_2^o, b_2^k en fonction de L/s (d'après la référence [82]).

Les variations de la charge Q sont reliées à la variation du gain G_o par les relations :

$$\Delta Q/Q = \Delta E_A/E_A$$

$$\Delta E_A/E_A = \frac{1}{g\ E_A}\ \frac{\Delta G_o}{G_o}$$

avec g pente de la courbe Log G_o (E_A).

VI.1.3.2.3 - Variation accidentelle de r_A

En première approximation, Q ne change pas, seul le champ local sur l'anode varie de :

$$\frac{\Delta E_A}{E_A} = -\ \frac{\Delta r_A}{r_A}$$

d'où la variation de gain

$$\frac{\Delta G_o}{G_o} = g\ E_A\ \frac{\Delta E_A}{E_A}$$

VI.1.3.2.4 - Variation locale de r_A

Dans le cas, Q change de ΔQ, d'où :

$$\Delta Q/Q = \frac{1}{2\pi L/s\ -\ 2\ \mathrm{Log}\ \frac{2\pi r_A}{s}}\ \cdot\ \frac{\Delta r_A}{r_A}$$

Il est intéressant de remarquer que, dans ce cas, avec L = 3 mm, s = 2 mm, r_A = 2 μ;

$$\Delta Q_o/Q_o = 0{,}051 \frac{\Delta r_A}{r_A}$$

alors que dans le cas où un seul fil a un diamètre légèrement différent :

$$\Delta Q_o/Q_o = 0{,}15 \frac{r_A}{r_A}$$, soit le triple.

VI.1.3.3 - Forme de l'impulsion de charges

D'après Rahm [83], la charge collectée Q(t) induite sur les plans de cathode est :

$$Q(t) = \frac{+Q_G}{2\pi L/s - 2 \text{ Log } \frac{2\pi r_A}{s}} \text{ Log} \left[\frac{e^{2\beta(t+t_o)} - 1}{e^{2\beta t_o} - 1} \right]$$

avec $$\beta = \frac{\pi^2 K_i V_o}{s^2 \left(\frac{\pi L}{s} - \text{Log } \frac{2\pi r_A}{s}\right)}$$

et $$t_o = \frac{1}{\beta} \text{ Log } \left| \text{ch}\left(\frac{\pi r_A}{s}\right) \right|$$

Avec s = 2 mm, L = 3 mm, r_A = 2 μ, V_o = 5 000 V les valeurs de β et de t_o sont :

$$\beta = 37{,}8 \text{ s}^{-1} \quad ; \quad t_o = 130 \text{ ns}$$

Le temps de transit est de 110 ms alors que dans la chambre cylindrique équivalente (r_K = 35,5 mm, V_o = 5 000 V) il est de 43 s.

La figure 53 montre Q(t) dans le cas d'une chambre multifils avec $\beta = 37{,}8 s^{-1}$ et t_o = 130 ns dans le xénon liquide.

Pour t du même ordre de grandeur que t_o, l'expression de Q(t) se réduit à :

$$Q(t) = \frac{+Q_G}{\frac{2\pi L}{s} - 2 \text{ Log } \frac{2\pi r_A}{s}} \text{ Log } \frac{t + t_o}{t_o}$$

VI.1.3.4 - Conclusions

Le champ électrique E_A à la surface de l'anode est, pour des dimensions comparables (L = r_K), plus faible dans le cas d'une chambre cylindrique.

A champ électrique égal sur l'anode, le champ sur la cathode est plus élevé dans une chambre multifils que dans une chambre cylindrique. Le temps de transit des ions et, par conséquent, le temps de montée de l'impulsion de charges sont donc, dans ce cas, plus courts.

Enfin, la variation des paramètres géométriques a une très grande influence

sur l'homogénéité de réponse du multidétecteur. Dans la plupart des cas, les tolérances de positionnement doivent être inférieures à 1 % du pas si une réponse homogène en gain à 10 % est souhaitée.

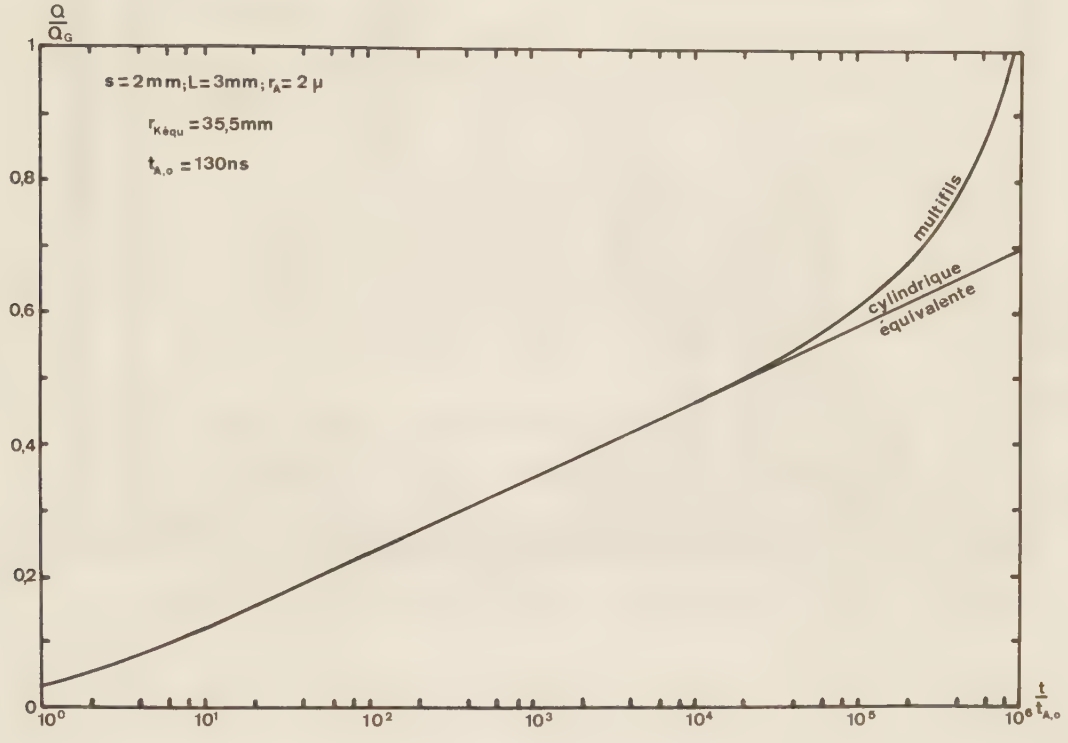


Figure 53 - Temps de montée de l'impulsion de charges dans une chambre multifils (s = 2 mm, L = 3 mm, r_A = 2 µ).

VI.2 - DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous avons choisi les valeurs suivantes pour les différents paramètres géométriques :

$$L = 3 \text{ mm} \quad ; \quad s = 2 \text{ mm} \quad ; \quad r_A = 2\ \mu.$$

La valeur de r_A est choisie afin d'éviter les problèmes relatifs à l'emploi d'une trés haute tension de valeur élevée. Près de l'anode, le champ électrique est de la forme :

$$E_{AMV/cm} = 9{,}8.10^{-4}\ \frac{V_o}{r}$$

soit E_A = 2 MV/cm quand V_o = 4 000 V, valeur suffisante pour obtenir l'amplification nécessaire à la détection.

VI.2.1 - Prototype de multidétecteur

Afin d'éviter toute pollution du liquide par les matériaux de la chambre, ceux-ci doivent être choisis métalliques ou minéraux. Le schéma d'ensemble du prototype est représenté en figure 54.

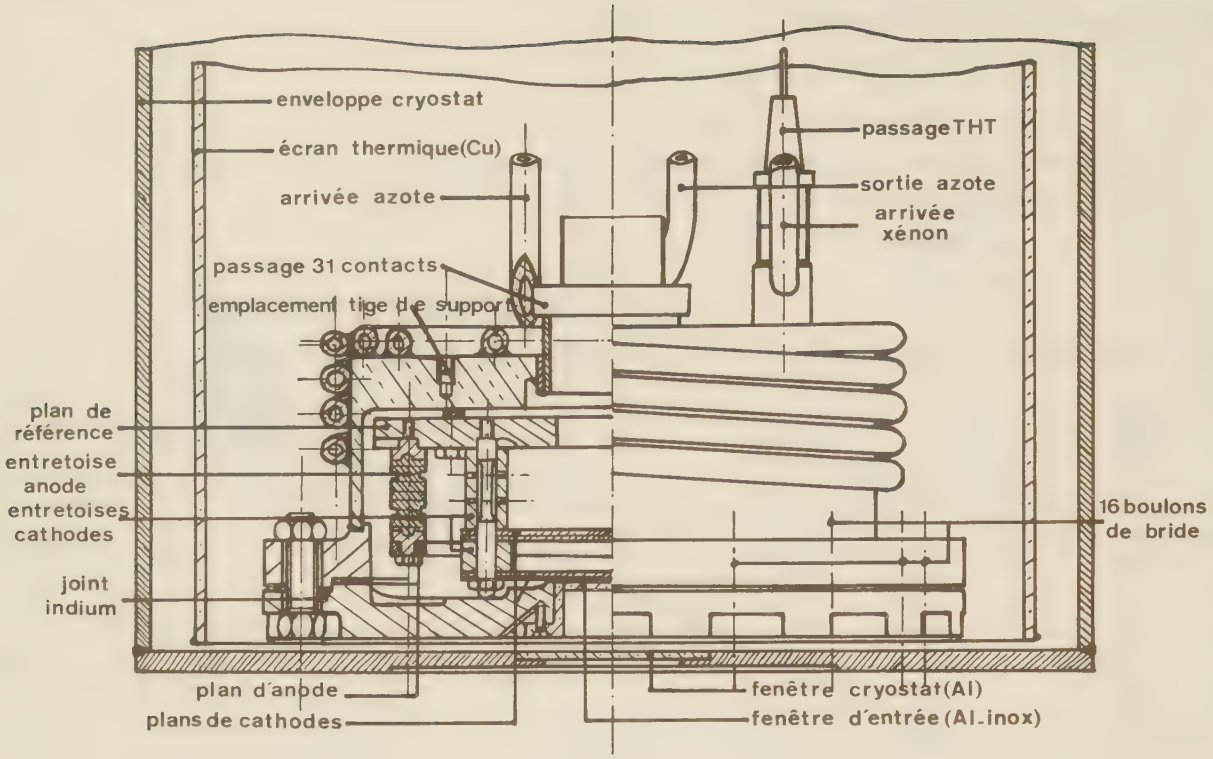


Figure 54 - Schéma d'ensemble du prototype.

VI.2.1.1 - Electrodes

La pente g maximale de la courbe Log G_o en fonction de E_A est, d'après la figure 35 du paragraphe IV.2.3.3, $9{,}25.10^{-7}$ cm/V.

Pour une variation de gain de 10 %, la charge Q par unité de longueur varie de 0,6 %. De cette variation maximale, nous pouvons déduire les tolérances de positionnement des fils, soient :

$$\frac{\Delta x}{s} = \pm\ 0{,}3\ \% \qquad \text{ou} \qquad \Delta x = \pm\ 60\ \mu$$

$$\frac{\Delta y}{s} = \pm\ 0{,}85\ \% \qquad \text{ou} \qquad \Delta y = \pm 170\ \mu$$

Afin de respecter ces tolérances, le plan d'anode est réalisé de la façon suivante. Les fils sont positionnés sur un cadre métallique plan à ± 10 µ dans des sillons photogravés à la surface de ce cadre (largeur du sillon : ± 20 µ, positionnement des sillons à ± 10 µ d'où $\Delta x = \pm 30\ \mu$) et soudés en place. Sur ce cadre sont mis en place 6 fils d'anode de diamètre 4 µ. Les premier et dernier fils de la nappe (fils de garde) ont cependant un diamètre supérieur (7,5 µ) afin de réduire les effets de bord.

Les plans de cathode sont réalisés à partir de plaques de verre métallisées et photogravées.

Les trois plans d'électrodes sont ensuite fixés à un plan de référence par

un jeu d'entretoises de longueur connue à ± 20 µ, métalliques pour les plans de cathodes, en alumine-titane pour le plan d'anode.

VI.2.1.2 - Environnement cryogénique

VI.2.1.2.1 - Fenêtre d'entrée

Constituée d'une partie métallique et d'une épaisseur de xénon liquide, elle doit être aussi mince que possible et d'épaisseur constante.

La partie métallique est constituée par l'association d'une feuille d'acier inoxydable très mince (0,2 mm), brasée au corps du détecteur et assurant l'étanchéité et d'un support mécanique extérieur en aluminium, d'épaisseur 2 mm, résistant aux forces de pression à l'intérieur de la chambre (3 bars maximum). L'épaisseur de la lame de xénon liquide est déterminée par l'appui du sommet des entretoises de cathodes sur le corps du détecteur soit 0,25 mm ± 0,05 mm.

VI.2.1.2.2 - Enveloppe du détecteur

Le corps du détecteur est réalisé pour la plus grande partie en cuivre sur lequel sont soudés deux serpentins de refroidissement dans lesquels circule le gaz réfrigérant. Sur cette partie sont brasés les passages électriques (passage - contacts verre fritté - dilver et passage THT céramique-titane-acier inoxydable) ainsi que l'arrivée de xénon.

Le plan de référence des entretoises (en acier inoxydable) est fixé de façon souple sur le fond de la partie en cuivre.

La possibilité de changement d'électrodes est assurée grâce à une bride de démontage en acier inoxydable munie d'un joint d'indium.

Enfin l'ensemble est monté dans un cryostat muni d'un écran thermique et de fenêtres d'entrée des rayonnements.

VI.2.1.3 - Conclusion

Ce projet met en oeuvre des techniques de réalisation modernes (brasure sous vide, par bombardement électronique, usinage de céramique, microphotogravure) donc coûteuses. Pour des raisons financières et de rapidité d'exécution, nous avons entrepris la réalisation d'un prototype simplifié, de taille réduite afin de pouvoir le placer dans la chambre de mesures disponible, ce prototype devant cependant permettre la mesure des caractéristiques principales d'un détecteur de localisation.

VI.2.2 - Prototype simplifié

Afin de faciliter la construction du prototype, nous avons toléré la présence de matières isolantes non minérales (résine époxy armée de fibre de verre) non admissible dans une réalisation élaborée. Les valeurs des différents paramètres sont les mêmes que précédemment (L = 3 mm, s = 2 mm, r_A = 2 µ).

VI.2.2.1 - Electrodes

Le plan d'anode est réalisé de la même façon que précédemment sur un cadre

d'acier inoxydable photogravé (dimensions intérieures 36 mm x 26 mm). Un plan de cathode sert à la mesure du gain et de la fonction de transfert de modulation. Une bande de cathode de 2 mm de large est gravée au milieu de la zone utile sur ce plan (résine époxy armée recouverte d'une feuille de cuivre) et sert à la mesure, le reste de la surface métallique étant relié par ailleurs à la masse électrique de l'ensemble.

L'autre plan de cathode est entièrement métallique et relié à la masse électrique de l'ensemble.

Les trois plans sont fixés sur un même support usiné dans une pièce de résine époxy armée de telle façon que les lignes de fuite de courant soient les plus longues possible entre les plans de cathode et d'anode d'une part, entre le plan d'anode et l'enveloppe contenant le xénon liquide d'autre part. Un jeu d'entretoises maintient les plans aux niveaux déterminés par leurs épaisseurs et la valeur de L.

VI.2.2.2 - Source de rayonnement

Nous utilisons la même source que celle utilisée précédemment (encapsulage dans un boîtier de nickel soudé électriquement et étanche au vide poussé).

Cette source (^{137}Cs) est collimatée par une fente de largeur 0,4 mm et d'épaisseur 6 mm. Nous pouvons donc considérer que la largeur à mi-hauteur du lobe d'activité est environ 0,6 mm. Cette source est fixée sur une tige mobile (étanchéité de l'enveloppe assurée par un soufflet métallique soudé) qui peut être commandée de l'extérieur du cryostat.

VI.2.2.3 - Résultats

L'amplitude du signal de la cathode de mesure correspond à un fonctionnement en chambre d'ionisation quelle que soit la tension appliquée (V_o < 5 000 V).

En considérant :

- que, pour une tension de 5 000 V, le champ sur l'anode est égal à 2,5 MV/cm valeur suffisante, en chambre cylindrique, pour obtenir des gains de l'ordre de 100 ;

- qu'un chromatogramme du gaz employé ne montre aucun pic d'oxygène ou d'azote (les teneurs sont alors inférieures à 40 ppb) ;

nous concluons à une pollution apportée par des impuretés très électronégatives libérées à faible taux par les faces usinées des supports et entretoises en résine époxy armée de fibre de verre.

VI.2.3 - Conclusion

Le déclenchement d'avalanches électroniques est étroitement lié à la pureté du liquide.

Il semble donc que l'emploi de matériaux organiques relativement inertes cause malgré tout une pollution du liquide telle que le fonctionnement en régime proportionnel soit délicat, voire impossible.

Notre conclusion rejoint en cela celle du groupe de Berkeley [63]. Nous pensons que le bon fonctionnement d'une chambre multifils à diélectrique liquide

est incompatible avec l'emploi de matières organiques et est subordonné à l'utilisation de matières plus nobles.

Il faut aussi noter que, en raison de la fragilité des fils de tungstène doré de diamètre 4 μ(charge de rupture environ 6 g), la valeur de s et les dimensions des plans d'électrodes sont limitées par la valeur de la tension mécanique requise pour assurer une stabilité inconditionnelle des fils malgré l'action des forces électrostatiques (proportionnelle au carré de la longueur des fils et au carré de la tension appliquée [84]).

CONCLUSION

Le présent travail de thèse a montré que les gaz nobles liquéfiés présentent des propriétés de transport des électrons qui en font des milieux favorables à la détection des rayonnements nucléaires. Le principal avantage retiré de l'utilisation de tels diélectriques est l'accroissement de l'efficacité de détection dans de grandes proportions par rapport aux gaz.

La détection n'est cependant obtenue de façon satisfaisante qu'au prix d'une purification poussée de ces liquides et d'une technologie n'apportant aucune pollution.

Les résultats obtenus en chambre d'ionisation à impulsions ont permis de préciser certaines propriétés de ces liquides relatives à la collection des électrons dans ces milieux et ont montré qu'un tel détecteur, d'une grande simplicité est bien adapté à la détection et, par extension, à la localisation de particules chargées de forte énergie (supérieure à 500 keV).

Avec ce mode de fonctionnement, l'argon liquide est alors le plus intéressant à utiliser, surtout en vue de la réalisation de détecteurs de grandes dimensions (prix de revient moindre que le xénon).

Malgré le poids de l'environnement cryogénique, les applications de tels détecteurs en physique des hautes énergies sont dès à présent envisageables.

Le fonctionnement en régime proportionnel permet d'une part la détection de plus faibles quantités de charges (créées par une particule au minimum d'ionisation ou par des photons d'énergie inférieure à 100 keV par exemple), d'autre part une localisation plus aisée des particules grâce à la présence d'impulsions de charges d'amplitude plus élevée pouvant être traitées par des dispositifs électroniques plus simples.

Cependant, ces avantages sont acquis au prix d'une technologie plus compliquée par la présence du plan de fils d'anode et de conditions beaucoup plus strictes quant à la qualité des liquides.

Malgré ces restrictions, l'efficacité de détection des photons γ dans le xénon liquide fait de ce dernier un diélectrique de choix pour la médecine nucléaire ou la physique des hautes énergies (expériences pour lesquelles une haute résolution spatiale est nécessaire).

D'une manière générale, les études actuellement menées dans le domaine des chambres multifils, qu'elles soient à diélectrique gazeux ou liquide, visent à l'augmentation de la résolution spatiale (diminution du pas s, mesure du temps de vol des électrons du lieu d'interaction au fil d'anode).

La complication du système de traitement des impulsions entraînée par la diminution du pas entre chaque fil imposerait cependant une limite inférieure de la résolution spatiale en raison du nombre excessif de voies de mesure nécessaires.

Les recherches actuellement menées au LETI tendent vers la mise au point de systèmes de traitement mieux adaptés à l'accroissement du nombre total d'informations recueillies et permettant en particulier d'interpoler entre les positions centrales des bandes de cathode (par exemple ligne à retard extérieure ou intégrée à la chambre, calcul du centre de gravité de la charge induite).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

[1] ALLEMAND R., BREY C., GAGELIN J.J., LAVAL M.
"Détecteur stationnaire à gaz pour la cartographie et les études dynamiques d'organes à partir d'émetteurs X ou γ de faible énergie". Table ronde sur l'exploration fonctionnelle par les isotopes radioactifs - Strasbourg (mai 1970).

[2] CHARPAK G., BOUCLIER R., BRESSANI T., FAVIER J., ZUPANČIČ Č.
Nucl. Inst. Meth. 62, 262 (1968).

[3] "Gamma-ray absorption coefficients for elements 1 through 100"
Los Alamos Scientific Laboratory Report LA 2237 (1958).

[4] DERENZO S.E., SMITH D.B., SMITS R.G., ZAKLAD H., ALVAREZ L.W.
Lawrence Radiation Laboratory Report UCRL 20118 (1970).

[5] ALLEMAND R., LAVAL M., PRUNIER J.
Int. J. App. Rad. Is. 22, 633 (1971).

[6] DERENZO S.E., MULLER R.A., SMITS R.G., ALVAREZ L.W.
Lawrence Radiation Laboratory Report UCRL 19254 (1969).

[7] HOFSTADER R.
Nucleonics 4, 29 (1969).

[8] SCHAUB B., NOLIN J.P.
Le Vide 118, 281 (1965).

[9] ZAKLAD H. - D. of Engineering Thesis -
Lawrence Radiation Laboratory Report UCRL 20690 (1971).

[10] MILLER L.S., HOWE S., SPEAR W.E.
Phys. Rev. 166, 871 (1968).

[11] DAVIDSON N., LARSH A.E. Jr.
Phys. Rev. 77, 706 (1950).

[12] HUTCHINSON G.N.
Nature 162, 610 (1948).

[13] SWAN D.W., LEWIS T.J.
a - Proc. Phys. Soc. 76, 36 (1960)
b - Proc. Phys. Soc. 78, 423 (1961)
c - Proc. Phys. Soc. 78, 448 (1961).

[14] WILLIAMS R.L.
Can. J. Phys. 35, 134 (1957).

[15] WILLIAMS R.L., STACEY F.D.
Can. J. Phys. 35, 923 (1957).

[16] STACEY F.D.
Aust. J. Phys. 11, 158 (1958).

[17] RICE S.A.
Acc. Chem. Res. 1, 81 (1968)

[18] LAVOIE L.
J. Nucl. Med. 12, 376 (1971).

[19] DOLGOSHEIN B., LEVEDENKO V., RODIONOV B.
Proceedings of the Conference on Instrumentation for High Energy Physics - p. 291 - Dubna - URSS (1970).

[20] Tables of energy losses and ranges of electrons and positrons
N.A.S.A. report N 65 - 12506 (1964).

[21] EVANS R.D.
The Atomic Nucleus - p. 655, Mc Graw Hill - New York (1955).

[22] BLAIN J.F.
Rapport CEA.R.3876 (1969).

[23] LEKNER J.
Phys. Rev. 158, 130 (1967).

[24] JORTNER J., KESTNER N.R., RICE S.A., COHEN M.H.
J. Chem. Phys. 43, 2614 (1965).

[25] FREEMAN G.R., FAYADTH J.M.
J. Chem. Phys. 43, 86 (1965).

[26] TONG B.Y.
Phys. Rev. A1, 52 (1970).

[27] LEVINE J.L., SANDERSIT M.T. Jr.
Phys. Rev. 154, 138 (1967).

[28] LE BLANC O.H. Jr.
J. Chem. Phys. 30, 1443 (1959)

[29] ADAMCZEWSKI I.
"Les phénomènes d'ionisation et de conduction dans les diélectriques liquides" - Masson Paris (1968).

[30] HUMMEL A., ALLEN A.O.
J. Chem. Phys. 44, 3426 (1966).

[31] TEWARI P.H., FREEMAN G.R.
J. Chem. Phys. 49, 4394 (1968).

[32] HUMMEL A., ALLEN A.O., WATSON F.H. Jr.
J. Chem. Phys. 44, 3431 (1966).

[33] FELICI N.
Rev. Gén. Elec. 78, 717 (1969).

[34] SCHOCKLEY W.
Bell Syst. Tech. J. 30, 990 (1951).

[35] RAHMAN A.
Phys. Rev. A2, 405 (1964).

[36] SWINGWI K.S.
Physica 31, 1257 (1965).

[37] VON ENGEL A.
"Ionization in gases by electrons in electric fields"
Handbuch der Physik XXI, p.550 - Springer Berlin (1956).

[38] PRUNIER J., ALLEMAND R., LAVAL M., THOMAS G.
Nucl. Inst. Meth. 109, 257 (1973).

[39] PRUETT H.D.
Ph. D. Thesis - U. of California, Santa Barbara (1966)
University Microfilms Inc. MIC 66 - 5968.

[40] GERRITSEN A.N.
Physica 14, 387 (1948).

[41] Société l'Air Liquide - Division Scientifique.
Répertoire des gaz et mélanges de gaz.

[42] Documentation Badische Anilin - Note B302 f.

[43] Documentation Linde - Table 4A - 1.

[44] HEYLMUN G.W.
J. Gas Chrom. 3, 82 (1965).

[45] GIRARD J.L., PRUNIER J., THOMAS G.
Note LETI/MCTE (à paraître).

[46] CONTE R.R.
Eléments de Cryogénie - Masson Paris (1970).

[47] COOK G.A.
"Argon, Helium and the rare gases"
Interscience Publishers Inc. New York (1964).

[48] LECOMTE J., THEVENIN M.
Note CENG Int/EL 66-848/III.

[49] SWAN D.W.
Proc. Phys. Soc. 82, 74 (1963).

[50] SWAN D.W.
Proc. Phys. Soc. 85, 1297 (1965).

[51] BLOCH F., BRADBURY N.E.
Phys. Rev. 48, 689 (1935).

[52] MARSHALL J.H.
Rev. Sci. Inst. 25, 232 (1954).

[53] GELTMAN S.
Phys. Rev. 102, 171 (1956).

[54] ROUBERT F.
Thèse de Docteur-Ingénieur - U. de Strasbourg (1968).

[55] DAVIS H.T., RICE S.A., MEYER L.,
J. Chem. Phys. 37, 917 (1962).

[56] ALKHAZOV G.D.
Nucl. Inst. Meth. 89, 155 (1970).

[57] VON ENGEL A.
"Ionized Gases" - Clarendon Press - London (1955).

[58] THEOBALD J.K.
J. App. Phys. 24, 123 (1953).

[59] SILVER M., KHUMBHARE P., SMEJTEK P., ONN D.G.
J. Chem. Phys. 52, 5195 (1970).

[60] COLLI L., FACCHINI U.
Phys. Rev.,96, 1 (1954).

[61] PHILLIPS J.C.
Phys. Rev. 136 A, 1714 (1964).

[62] SCHNYDERS H., RICE S.A., MEYER L.
Phys. Rev. 150, 127 (1966).

[63] ZAKLAD H., DERENZO S.E., MULLER R.A., SMADJA G., SMITS R.G., ALVAREZ L.W.
IEEE Trans. Nucl. Sci. NS 19, 202 (1972).

[64] MULLER R.A., DERENZO S.E., SMADJA G., SMIT D.B., SMITS R.G., ZAKLAD H.
Lawrence Radiation Laboratory Report UCRL - 20811 (1971).

[65] MICHELS A., WASSENAAR T., LOUWERSE P.
Physica 20, 99 (1954).

[66] ZASTAWNY A.
J. Sci. Inst. 43, 179 (1966).

[67] SMIT J.A.
Physica 3, 543 (1936).

[68] MAÏER H., LEIBNITZ
Z. Phys. 95, 499 (1935).

[69] LOEB L.
"Basic processes of gaseous electronics"
University of California Press - Berkeley (1960).

[70] WARREN R.W., PARKER J.H.
Phys. Rev. 128, 2661 (1962).

[71] SCHIFF L.I.
"Quantum Mechanics" - Mc Graw Hill - New York (1955).

[72] WEISSLER G.
"Photoionization in gases and photoelectric emission from solids"
Handbuch der Physik XXI Springer - Berlin (1956).

[73] MELTON C.E., HURST G.S., BORTNER T.E.
Phys. Rev. 96, 643 (1954).

[74] KOOB R.D., KEVAN L.
J. Phys. Chem. 72, 3808 (1968).

[75] KLASSEN N.V.
J. Phys. Chem. 71, 2409 (1967).

[76] HURST G.S., BORTNER T.E.
J. Chem. Phys. 42, 713 (1965).

[77] MATZ D., GARCIA F., MOLLINER
J. Phys. Chem. Sol. 26, 551 (1965).

[78] EDER O.J., EGELSTAFF P.A.
"Proceedings of Symposium on Inelastic Scattering of Neutrons".
Copenhague, 20-25 mai 1968, IAEA (Vienne) 1968, p. 223.

[79] SWAN D.W.
Proc. Phys. Soc. 83, 659 (1964).

[80] DUTREIX J.
J. Rad. Elec. 46, 658 (1965).

[81] LAVAL M., JEANTET
J. Rad. Elec. 46, 665 (1965).

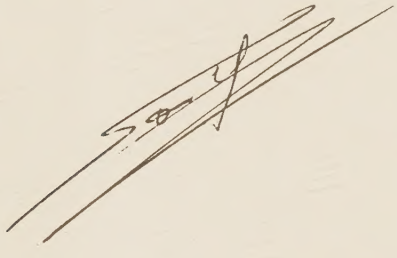
[82] ERSKINE G.A.
Nucl. Inst. Meth. 105, 565 (1972).

[83] CHARPAK G.
Ann. Rev. Nucl. Science 20, 195 (1970).

[84] TRIPPE T.
CERN Internal Report NP 69 - 18 (1969).

Manuscrit reçu le 19 novembre 1973

Vu et permis d'Imprimer

GRENOBLE, le 25 juillet 1973

Le Président de l'Université Scientifique et Médicale